CNRS
N° D'ordre :
190

T H E S E

présentée

à l'UNIVERSITE DE PARIS-SUD

CENTRE D'ORSAY

Pour obtenir le titre de Docteur-Ingénieur

par

Jacques AVENEL

"CONSTRUCTION D'UN REFRIGERATEUR A DISSOLUTION"

Soutenue le 7 juin 1973 devant la Commission d'Examen

MM. P. GRIVET — Président

E. GUYON, P. ROUBEAU — Examinateurs

T H E S E

présentée

à l'UNIVERSITE DE PARIS-SUD

CENTRE D'ORSAY

Pour obtenir le titre de Docteur-Ingénieur

par

Jacques AVENEL

"CONSTRUCTION D'UN REFRIGERATEUR A DISSOLUTION"

Soutenue le 7 juin 1973 devant la Commission d'Examen

MM.	P. GRIVET	Président
	E. GUYON	Examinateurs
	P. ROUBEAU	

UNIV.
LEIDEN
BIBL.

Avant-propos

"Avec deux lignes de l'écriture d'un homme on peut faire le procès du plus innocent".

Richelieu

Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41548019_0012

Monsieur le Professeur P. Grivet a bien voulu m'accueillir dans son Laboratoire et diriger cette étude. Je le prie de bien vouloir trouver ici l'expression de ma profonde gratitude.

Je remercie Monsieur M. Sauzade de l'accueil bienveillant qu'il m'a réservé au sein de son groupe.

E. Varoquaux, m'a guidé tout au long de ce travail, et a largement contribué aux résultats obtenus par ses conseils et l'aide qu'il n'a cessé de m'apporter : je lui en suis particulièrement reconnaissant.

Mes remerciements s'adressent aussi à P. Piéjus pour son précieux concours en toute occasion.

Je remercie A. Ghozlan, M. Sudraud, D. Le Fur, O. Avenel, D. Bloyet pour leur collaboration amicale.

Je remercie également Monsieur P. Roubeau de l'intérêt qu'il a porté à ce travail.

Je tiens à souligner la grande part qui revient à Monsieur M. Gauthier dans la réalisation de l'appareillage, sa compétence dans ce domaine n'a d'égal que sa conscience professionnelle.

La dactylographie du texte a été effectuée d'une manière très experte par Madame Giordano.

INTRODUCTION

L'utilisation des gaz liquifiés est un phénomène assez récent dans la recherche et l'industrie. En effet ce n'est que vers 1880 que la liquéfaction de l'oxygène est apparue. L'hélium, pour sa part, a été liquéfié pour la première fois en 1908 à Leyde par Kammerlingh Onnes.

La cryogénie, science récente, a pris son expansion au cours de notre siècle : ce phénomène va en s'accélérant du fait de son utilisation dans de nombreuses techniques de pointe. Les applications du froid sont déjà multiples. En particulier l'étude de la résistance des matériaux à des températures très basses a été obligatoire afin de permettre la construction des fusées et engins spatiaux. Le traitement préalable des métaux par le froid est utilisé en métallurgie (trempe par le froid). Le cryo-usinage est une méthode moderne d'usinage de certains alliages à base de nickel et de titane. Le cryofrèttage permet de réaliser des assemblages mécaniques difficiles sans chauffer l'une des 2 pièces à assembler (pas de modification des propriétés du métal). Le froid trouve aussi de nombreuses applications dans l'industrie alimentaire, dans la biologie ainsi que dans la médecine.(I). Pour toutes ces applications le gaz industriel idéal est l'azote du fait du prix de revient peu élevé de sa liquéfaction.

L'hélium quant à lui est encore peu utilisé dans l'industrie mais l'est beuacoup dans les laboratoires de recherche. Il est certain qu'il est promis à un grand avenir. En particulier les découvertes de la supraconductibilité et plus récemment de l'effet Josephson en laisse présager de nombreuses utilisations. Mais les recherches fondamentales sur les hélium liquides sont loin d'être complètes. Très peu d'expériences nécessitant de très basses températures (inférieures à 0,5 Kelvin) ont été réalisées avant 1965 du fait de l'impossibilité non pas de produire, mais de maintenir pendant des temps suffisamment longs ces températures très basses.

En 1962 le physicien anglais H. London (2) proposait une nouvelle méthode permettant de maintenir, ce de manière continue, une enceinte à une température allant jusqu'à 6 m K; c'est la dissolution de l'hélium 3 dans l'hélium 4. Le principe de cette dissolution est fondé sur les propriétés des solutions isotopiques de l'hélium.

Les isotopes de masse 3 et 4 de l'hélium restent liquides jusqu'au zéro absolu sous leur tension de vapeur saturante. Il en est de même pour

les solutions d'hélium 3 et d'hélium 4 qui quant à elles ne sont stables qu'au dessus de 0.87 K. En dessous de cette température il existe une plage de concentration pour laquelle les solutions se déco posent spontanément en deux constituants l'un riche en hélium 4, l'autre riche en hélium 3; il y a séparation de phase. Ce phénomène est dû à la différence de masse des isotopes. Au fur et à mesure que la température s'abaisse, la phase concentrée en hélium 3 va en s'enrichissant aux dépens de la phase diluée qui va en s'appauvrissant. Au zéro absolu, la phase concentrée est constituée uniquement d'hélium 3 et la phase diluée contient environ 6,5% d'hélium 3 pour 93,5% d'hélium 4 en concentrations molaires.

La dissolution d'hélium 3 dans l'hélium 4 s'accompagne d'effets thermiques importants liés à l'existence d'une chaleur latente de changement de phase, ou chaleur de dissolution de l'hélium 3 dans la solution diluée. L'existence de cette chaleur de dissolution importante explique l'efficacité de la production du froid par dissolution de l'hélium 3 dans l'hélium 4. La caractéristique la plus importante de ce cycle est le fait de pouvoir être mis en oeuvre d'une manière continue. Des descriptions détaillées de la méthode de production des grands froids par dissolution ont été données, tant dans la presse de haute vulgarisation (3) que dans les articles spécialisés (4) .

Je considérerai donc dans la suite le procédé comme bien connu dans ses grandes lignes et adopterai le point de vue des Sciences de l'Ingénieur. En effet, si dans son principe la méthode est relativement simple, sa mise en oeuvre est beaucoup plus complexe. Le réfrigérateur à dissolution est un appareil sophistiqué et sa fabrication nécessite de l'expérience ainsi qu'une solide dose de patience et de minutie.

Le but du présent exposé est de décrire le second réfrigérateur conçu et mis au point à Orsay à l'Institut d'Electronique Fondamentale et dont la réalisation m'a été confiée. Cet exposé se décompose en trois grands chapitres :

- le premier concerne le choix des matériaux de construction,
- le second donne la description pratique détaillée du réfrigérateur,
- le dernier décrit les performances de l'appareil et les résultats obtenus.

Mais avant d'aborder le premier chapitre, il me faut rappeler les objectifs de départ du projet de construction de ce second modèle d'appareil. Pour celà parlons d'abord du premier.

Le premier appareil offrait un débit d'hélium 3 de 7 à 10 μ moles/s. Etant un prototype dont la construction avait été commencée en 1965 alors que très peu de choses étaient connues sur ce sujet, il présentait des inconvénients que nous avons essayé d'éliminer du second modèle. Ces inconvénients étaient les suivants :

- Faible débit d'hélium 3
- Démarrage délicat
- Inertie thermique assez grande
- Maintenance compliquée
- Fiabilité faible
- Obligation d'une surveillance continue

Dans la seconde version nous avons tenu compte de tous les enseignements reçus. Les buts poursuivis étaient les suivants :

- Fort débit d'hélium 3 (100 μmoles/s)
- Démarrage facile
- Inertie thermique faible
- Grande fiabilité
- Maintenance facile
- Pas de surveillance

Les résultats cherchés ont été obtenus en grande partie. Le débit est assuré grâce à des calculs convenables et de nombreux essais des circuits. Le démarrage de l'appareil ne pose aucun problème et sa descente en température est rapide. Le nouvel appareil offre une autonomie de 24 heures ce qui permet de maintenir un rythme d'expériences soutenu.

Egalement grâce à un nombre d'appareils de contrôles automatiques et de sécurités, la marche de l'appareil s'effectue d'elle-même et l'utilisateur n'est plus absorbé par la surveillance.

Une attention toute particulière a été portée à la fiabilité de l'appareil. Les deux pierres d'achoppement principales étaient d'une part le manque d'étanchéité de la partie la plus froide de l'appareil, d'autre part l'obstruction des canalisations de liquides cryogéniques. Ces deux problèmes d'étanchéité et de propreté interne de circuits de fluide sont très étudiés en physique industrielle et bien connus des frigoristes. Ce sont les conditions très rigoureuses rencontrées dans la fabrication du réfrigérateur à dissolution, qui les compliquent grandement. Il faut en effet obtenir un vide d'isolement de l'ordre de 10^{-9} Torr autour de la partie la plus froide de l'appareil, constituée de tuyauteries miniatures contenant un liquide super-

fluide, c'est-à-dire apte à s'échapper par la plus petite et la plus ténue des fuites. Il faut en outre préciser que cette tuyauterie est soumise à des contraintes thermiques importantes puisqu'elle est portée à une température inférieure à -273°C.

Je vais décrire dans les chapitres qui vont suivre les techniques et méthodes qui ont été mises au point , les essais qui ont été effectués ainsi que la conception et la réalisation du réfrigérateur à dissolution actuellement en fonctionnement à l'Institut d'Electronique Fondamentale.

REFERENCES

(1) F. Lafay, Revue Française de l'Electricité r° 229 54 (1970) .

(2) H. London, G.R. Clarke, E. Mendoza, Phys. Rev. 128 1992 (1962).

(3) D. Fishlock, New Scientist 24 mars 1966 .

K. Mendelssohn, La recherche du zéro absolu
Collection l'univers des connaissances Hachette (1967).

E.J.A. Varoquaux, C.R. Acad. Sciences, 265, 1372 (1967) .

O.E. Vilches, J.C. Wheatley, Phys. Let. 24 A , 440 (1967).; 25A 344 (1967)

O.V. Lounasmaa, Helvetica Physica Acta 41 1021 (1968).

B.S. Neganov, Vestn. Akad. Nauk.SSSR, 12 49 (1968) .

D.S. Betts, Contemp. Phys. 9, 97 (1968).

J.C. Wheatley, Sciences , Juillet 1969 .

K.N. Zinov'eva, Inst. Exp. Tech . (USSR), 2, 532 (1969).

A. Lacaze, La Recherche, 9 février 1971 .

E. Varoquaux, Sciences Progrès Découverte, Mars 1971.

(4) H.E. Hall, P.J. Ford et K. Thompson, Cryogenics 6 80 (1966)

B.S. Neganov, N. Borisov et M. Liburg, Sov. Phys. JETP 23 959 (1966)

V.P. Peshkov, Sov. Phys. JETP 24 1227 (1967)

J.C. Wheatley, O.E. Vilches, W.R. Abel, Physics, 4 I (1968)

B.S. Neganov, Rapport interne Joint Institut for Nuclear Research
p. 13-4014 (1968)

G.J. Ehnholm, T.E. Katila, O.V. Lounasmaa, P. Reivari
Cryogenics 8, 136 (1968)

E. Varoquaux, Compte rendu du colloque franco-soviétique de
Bakouriani. Tbilissi 1969, volume I

A.C. Anderson, Rev. Scien. Inst. 41 1446 (1970)

V.P. Peshkov, Cryogenics, 10 250 (1970)

R. Radebaugh, J.D. Siegwarth, Cryogenics, II 368 (1971)

Chapitre 1

L E S M A T E R I A U X

1.1. LES MATERIAUX METALLIQUES (1)

1.11. CRITERES DU CHOIX

La construction d'appareils cryogéniques nécessite l'emploi de matériaux parfaitement adaptés aux basses températures. Ces matériaux doivent posséder certaines qualités spécifiques. Ils doivent supporter bien entendu les chocs thermiques répétés. Ils auront donc une ductibilité suffisante ainsi qu'un coefficient de dilatation linéaire régulièr et, bien entendu, une bonne résistance mécanique. Il est préférable qu'il n'y ait pas de changement de phase entre l'ambiante et le zéro absolu.

Les matériaux traditionnellement utilisés sont les aciers inoxydables, le cuivre, le laiton, le maillechort et les cupro-nickels. L'acier inoxydable présente de nombreux avantages. Il est insensible à beaucoup d'agents chimiques et atmosphériques. De plus il offre une très bonne résistance mécanique permettant de fabriquer des instruments solides. Le cuivre pour sa part est employé pour quelques applications bien définies où une bonne transmission de chaleur est nécessaire. Partout où ce facteur n'est pas déterminant, il est plus aisé d'employer le laiton, à cause de sa facilité d'usinage.

Pour effectuer la liaison de ces matériaux, il existe de nombreux procédés. Les plus utilisés au laboratoire sont la brasure du fait de sa facilité d'emploi, et la soudure à l'arc sous argon. En effet ces méthodes ne nécessitent pas l'emploi d'appareillage compliqué et permettent de réaliser de petites pièces avec beaucoup de précision.

Nous allons passer en revue ces matériaux traditionnels et sélectionner ceux qui sont les mieux adaptés à la construction d'appareils cryogéniques solides mécaniquement, résistants aux chocs thermiques et offrant le plus de garanties sur le plan de l'étanchéité. Ce problème de l'étanchéité est un souci constant dans les réfrigérateurs à dissolution qui, comme on le verra par la suite, nécessitent des assemblages de tuyauterie assez complexes contenant de l'hélium superfluide. Ces tuyauteries sont placées dans des vides de 10^{-9} à 10^{-10} Torr et la moindre fuite ne peut y être tolérée.

1.12. ACIERS INOXYDABLES

L'inoxydabilité de l'acier, c'est-à-dire une résistance convenable à la corrosion atmosphérique est une qualité considérée comme acquise à partir de 12% de chrome. Les aciers de ce type se rangent en trois catégories:

- les aciers ferritiques
- les aciers martensitiques
- les aciers austénitiques

Les deux premiers types sont à proscrire du fait de leur fragilité à froid. Pour les usages cryogéniques, le choix des aciers austénitiques s'impose (2).

La structure austénitique est une structure cubique à face centrée. Cette phase est normalement stable au dessus de 723°C seulement. La stabilisation à température plus basse est obtenue par l'addition en quantités convenables de nickel, de chrome et parfois d'autres éléments, comme on le verra plus loin. Le type de ces aciers austénitiques est le Z3 CN 18/10 (AISI 304).

Si ces aciers possèdent de bonnes propriétés mécaniques à basse température, ils ont toutefois un inconvénient : ils sont sensibles à la corrosion intergranulaire. Pour expliquer cette corrosion, l'hypothèse la plus généralement admise suppose l'existence d'une déchromisation des régions voisines des frontières des grains, provoquée par la formation de carbures mixtes de chrome et de fer, répondant principalement à la formule $(Cr, Fe)_{23}C_6$ et localisés dans les joints intergranulaires. La teneur en chrome ayant baissée alors au dessous du seuil de protection, le milieu corrosif en contact avec l'acier peut pénétrer à l'intérieur du métal en cheminant le long des joints (3). L'acier peut alors dans les cas les plus caractéristiques se fissurer complètement ou même se transformer en une véritable poussière cristalline. La précipitation préférentielle des carbures dans les joints intergranulaires se produit par maintien prolongé de l'acier aux températures comprises entre 500 et 800°C environ. Or, ces températures sont souvent atteintes au cours des opérations de soudage.

Il existe diverses façons de remédier à cette corrosion intergranulaire:

- Traitement d'hypertrempe

Il consiste à chauffer l'acier à 1150°C environ sous atmosphère neutre ou réductrice, ce qui permet aux carbures nocifs de se dissoudre dans

l'austénite. Un refroidissement rapide évite la reprécipitation de ces carbures. Les aciers austénitiques se présentant sous forme de tubes, barres ou tôles sont livrés après avoir subi ce traitement. Mais au cours de l'assemblage les jonctions par brasure suppriment l'effet de cette hypertrempe aux environs de la jonction.

- Stabilisation

Cette méthode consiste à additionner à l'acier un élément fixateur du carbone, c'est-à-dire ayant pour le carbone une affinité supérieure à celle du chrome. Ces éléments stabilisants sont : - le tantale, - le niobium , - le titane. Mais cette méthode est à proscrire ici car la formation de ferrite due à l'addition de ces stabilisateurs rend le métal plus fragile à froid.

- Abaissement de la teneur en carbone

Puisque le carbone est responsable de la corrosion intergranulaire, le remède le plus simple consiste à diminuer la teneur en carbone au dessous d'un certain seuil critique, allant de 0,025% à 0,035% suivant les teneurs des autres éléments. On peut appliquer la formule générale suivante (3) , donnant la teneur maximale en carbone pour que l'acier résiste à la corrosion intergranulaire en fonction des autres éléments et de l'indice AFNOR du grain (G)

$$Cm = 0.005 \sqrt{2^{G-1}} \quad (Cr+Mo- 17) + \frac{Ti}{4} + \frac{Nb}{8} + 0.015$$

Cr, Mo, Ti, Nb étant respectivement les teneurs en pourcentage des éléments chrome molybdène titane et niobium. Même si l'acier a un indice de grain G = 3, la formule donne Cm = 0.035.

- Addition de molybdène

Une addition de 2 à 3% de molybdène, permet de renforcer l'action passivante du chrome, donc d'éviter la corrosion intergranulaire.

Le choix de l'acier est donc guidé par les deux dernières méthodes. Il faut un acier austénitique à basse teneur en carbone contenant du molybdène et ayant subi une hypertrempe à 1150°C avec refroidissement rapide. L'acier choisi est donc l'acier Z_2 CND 17-12 (US 316 L ou NSM 21 S UGINE).

Sa teneur équivalente en chrome est :

Cr% = Cr% + Mo% + 1,5 x Si% + 0,5 Nb% = 21

Sa teneur équivalente en nickel est :

$$Ni\% = Ni\% + 30 \times C\% + 0{,}5\ Mn\% = 14$$

Si l'on porte ce point sur la coupe isotherme à 20°C du diagramme ternaire Fe Cr Ni, il se trouve dans la zone de l'austénite métastable. Il ne contient peu ou pas de ferrite à condition que le refroidissement au cours de l'hypertrempe ait été rapide. La teneur en molybdène améliore la résistance à la corrosion dans la plupart des milieux acides et dans les solutions génératrices de piqures. De plus il se soude facilement et il est très ductile. Il résiste à la corrosion intergranulaire même après soudage ceci sans traitement thermique ultérieur.

Ses propriétés physiques sont les suivantes : (4)

- Conductibilité thermique à 20°C 0.155 W/cm°K
- Coefficient moyen de dilatation linéaire 16×10^{-6}

Ses caractéristiques mécaniques sont les suivantes :

- Charge de rupture $R = 50 - 65$ kg/mm^2
- Limite d'élasticité conventionnelle à 0,2% d'allongement rémanent $E\ 0{,}2 = 19$ kg/mm^2 minimum
- Allongement après rupture $A\%$ minimum = 50%

à - 196°C KUF mini = 15 kg/cm^2

Ces bonnes caractéristiques mécaniques sont conservées à basse température comme on peut le voir sur la figure (2) (2)

Les aciers de ce type ont une bonne résistance chimique : (4) . Après usinage et soudage, il est recommandé de passiver et de décontaminer l'acier par un bain fluonitrique (HNO_3 36° Bé 100 l, NaF 20 kg, eau 900 l). Le temps d'immersion sera de 10 à 20 minutes à froid. Puis l'acier sera décontaminé dans le bain nitrique (HNO_3 36 Bé 250L, eau 750L). C'est après ces traitements que l'acier austénitique présente sa meilleure résistance à la corrosion. C'est notre pratique courante au laboratoire. Je reviendrai plus loin sur l'importance du nettoyage des pièces finies en acier.

Comme je l'indiquerai au chapitre 3, nous avons mesuré la conductibilité thermique de l'acier Z2 CND 17-12 aux alentours de 0,1 Kelvin et l'avons trouvé égale à environ $7\ 10^{-4} \times T$ W/cm°K. Cette mesure est dans le prolongement de celles effectuées à plus haute température (5) comme on peut le voir sur la figure n° 3.

1.13. LE CUIVRE

Le cuivre possède un système cristallin cubique à face centrée dont le paramètre est 3,60 Å. Ses propriétés mécaniques à basse température sont excellentes. Son coefficient de dilatation linéaire est de 17×10^{-6} très voisin de celui de l'acier Z2 CND 17-12. Il a une résistance chimique suffisante pour les applications cryogéniques.

Le cuivre industriel titre environ 99,8% : il ne doit pas contenir de toute façon plus de 0,4% d'impureté. Le cuivre purifié recuit possède une excellente malléabilité et une très bonne ductibilité, puisqu'on a pu réaliser des feuillets de 2µ d'épaisseur. Le cuivre recuit s'écrouit très facilement.

Caractéristiques mécaniques

		Cuivre recuit	Cuivre écrouit
Charge de rupture : kg/mm^2	R	22	40
Limite élastique : kg/mm^2	E	5	50
Dureté Brinell	H	50	100
Allongement après rupture: %	A	40	4
Module d'élasticité longitudinal de Young : kg/mm^2		12700	

Teneur en oxydule

L'oxygène a une grande influence sur les propriétés du cuivre industriel. L'oxygène sous forme d'oxydule Cu_2O a été introduit au moment de l'affinage par l'oxydation sélective des impuretés. Si cet élément a l'avantage de calmer le bain au moment de la coulée, de s'opposer à la mise en solution de l'hydrogène et de neutraliser le bismuth, la présence de l'eutectique Cu - Cu_2O à 0.4 % d'oxygène au joint des grains (cuivre rosette) joue un rôle néfaste par la fragilité qu'il confère au métal. Des forgeages successifs suivis de recuits provoquent facilement la coalescence de l'oxydule Cu_2O en grosses inclusions isolées et ainsi rendues inoffensives. Si le cuivre subit de nouveau une fusion même localisée, il redevient fragile ce qui écarte le procédé de soudage autogène, mais le brasage reste toujours possible ainsi que la soudure à l'arc sous argon qui est cependant délicate.

Une pièce en cuivre industriel chauffée en atmosphère réductrice d'hydrogène ou d'hydrocarbure devient poreuse et fragile, si elle contient plus de 0,03% d'oxygène, ceci par suite de la réduction de l'oxydule et de

la formation de vapeur d'eau (maladie d'hydrogène du cuivre). Ce phénomène de la maladie de l'hydrogène du cuivre peut être la cause de fuites des appareils cryogéniques, fuites extrêmement difficiles à détecter car diffuses et lentes à se manifester. Des précautions particulières doivent être prises pour le recuit ou le brasage de pièces en cuivre au four à hydrogène (6) .

Une faible addition de phosphore permet de ramener la teneur en oxygène à une valeur non dangereuse, mais malheureusement la conductivité s'abaisse de façon prohibitive. D'autres désoxydants permettent à la fois de rabaisser la teneur en oxygène et de conserver une conductivité élevée.

On obtient ainsi le cuivre O.F.H.C. (Oxygen free high conductivity).

Classification des cuivres N.F.A. A 53 100

Repère	Type de cuivre	Cu+ag%	P%
1) cuivres raffinés sensibles à la maladie de l'hydrogène et aux atmosphères réductrices (présence d'oxydule)			
Cu/a1	Affiné par voie électrolytique	99,90	0
Cu/a2	Affiné par voie thermique	99,90	traces
Cu/a3	Affiné par voie thermique	99,75	traces
2) cuivre raffiné désoxydé à teneur résiduelle en phosphore			
Cu/b	Affiné par voie électrolytique ou thermique, désoxydé au phosphore.	99,90	0,013 à 0,050
3) cuivres raffinés exempts d'oxygène			
Cu/C1	Sans désoxydant résiduel élaboré à partir de cathodes fondues et coulées à l'abri de l'air .	99,92	0
Cu/C2	dito	99,96	0

Les cuivres Cu/a1, Cu/a2 , Cu/c1, Cu/c2 sont des cuivres H C (à haute conductibilité). Leur résistivité est égale à $1,724\ 10^{-6}$ ohm/cm. Le cuivre Cu/a 3 contient des traces de phosphore telles que sa conductibilité ne peut être garantie. Le tableau ci-dessus permet de

choisir la qualité du cuivre en fonction de son usage. Le cuivre Cu/a1 est le plus couramment utilisé. La confection des échangeurs de chaleur du réfrigérateur à dissolution nécessite l'emploi du Cu/c ou OFHC .

1.14. LES LAITONS

Les laitons comme le cuivre se brasent aisément. Lorsqu'on utilise un laiton pour décolletage du type UZ 39 Pb 2 (Zinc 39%, Plomb 2%) ou UZ 40 son usinage est facile. Le zinc étant un puissant réducteur, les laitons sont exempts d'oxydules. Le module d'Young du laiton UZ 39Pb2 est de l'ordre de 9500 kg/mm^2. Sa résistance à la traction est au minimum de 30kg/mm^2 et dépend de l'écrouissage. Sa limite élastique est de 14 kg/mm^2.

Le laiton UZ39Pb2 est un laiton diphasé. La phase α est isomorphe du cuivre et est donc cristallisée dans le système cubique à face centrée. La phase β' est formée d'un réseau cubique simple d'atomes de cuivre et d'un réseau cubique simple d'atomes de zinc, le deuxième réseau étant obtenu à partir du premier par translation d'une 1/2 diagonale du cube. La phase α est précipitée dans les clivages des grains. Le plomb pour sa part reste en phase séparée entièrement distincte des constituants α β' . Le rôle de cet élément est en effet de provoquer la rupture du copeau pendant le décolletage.

Toutefois le laiton à décolleter est très sujet à la formation de criques et de fêlures : son emploi est à déconseiller pour la confection des pièces étanches. Le laiton à matricer qui offre plus de sécurité à cet égard, est aussi plus difficile à usiner.

1.15. MAILLECHORT ET CUPRO NICKELS (7)

Maillechort

Ce sont des alliages ternaires cuivre, zinc, nickel. Ils ressemblent beaucoup à un laiton monophasé dans lequel le cuivre de base aurait été remplacé par la solution solide cuivre nickel. Ils contiennent presque tous une teneur de 60% de cuivre à plus ou moins 3% près et leur composition en nickel et en zinc s'éloigne peu des valeurs respectives 18 et 22, ce qui fait que le maillechort type aura pour sigle UZ 22 N 18. Après travail de l'alliage il est préférable de lui faire subir un recuit d'homogénéisation à 800°C afin d'éviter une ségrégation dendritique.

Le principal avantage du maillechort est sa résistance à la corrosion due au nickel dont la teneur optimale est de 18%.

Cupro-nickels

Deux cupro nickels sont intéressants : l'UN 30 et le NU 35.

UN 30

Ce cupro nickel contient 30% de nickel. Sa dureté est supérieure à celle du cuivre et il présente une résistance élevée à la corrosion. Mais la présence de fer (0.2% à 1% au maximum) provenant du minerai de nickel, diminue sa résistance à la corrosion par piqûres.

NU 35 ou Métal Monel

Il contient environ 65% de nickel, c'est donc un alliage de nickel et non pas de cuivre. A l'état recuit (900°C) sa résistance est de 55 kg/mm^2 et la limite élastique est de 25 kg/mm^2. Celle-ci peut être fortement relevée par écrouissage. Le métal Monel garde ses propriétés jusqu'à 600°C environ. En outre il présente une excellente résistance à la corrosion.

Les maillechort, cupro-nickels et monel ne sont pas des alliages très répandus et aisément disponibles. Leur étirage est délicat et les produits finis (capillaires, plaques minces) présentent souvent des défauts. De plus le maillechort et les cupro-nickels supportent mal la brasure. Le monel devrait constituer un alliage très prometteur.

1.2. LES BRASURES (8)

Les différents types de métaux étant définis, voyons maintenant les différentes brasures utilisées pour les assembler.

Huit types de brasures sont utilisés pour joindre les différentes parties de l'appareillage. Leur température de fusion est étalée de 880°C à 70°C ce qui permet d'effectuer plusieurs liaisons sur une même pièce. Mentionnons ici pour mémoire la soudure à l'arc sous argon qui est le procédé de choix pour l'acier inoxydable.

1.21. LES DIFFERENTS TYPES DE BRASURES

Castolin 18

La première utilisée est la Castolin 18 dont la température de fusion est de 870/890°C. Sa composition est Cu58% Zn 40,7% Si 3% Ag 10% Sa résistance à la traction est de l'ordre de 45 à 55 kg/mm^2. Pour l'acier inoxydable, la température est trop élevée (corrosion intergranulaire). Egalement le point de fusion des laitons à décolleter étant voisin de 900°C il faut prendre garde à la déformation des pièces. Le nettoyage de la soudure se fait avec une solution d'acide sulfurique (10 à 15%).

Castolin 1802

La castolin 1802 a une température de liaison de 550°C. L'intervalle de fusion est 608/615°C. Elle est donc proche d'un eutectique. C'est une brasure à forte teneur en argent (Ag 45%, Cu 15%, Zn 16%, Cd 24%) qui est semblable aux brasures de type Easy Flow (Ag 50%, Cu 15,5%, Zn 16,5%, Cd 18%) employées aux Etats Unis. Sa résistance à la traction est de l'ordre de 35 à 45 kg/mm^2.

Cette brasure permet l'assemblage des cuivreux et de l'acier inoxydable. La flamme du chalumeau doit être neutre. Le décapant utilisé est du Borax activé qui fond à peu près à la même température de liaison de la brasure. Le fait de refroidir rapidement les pièces à l'eau permet un nettoyage plus facile du flux. Le nettoyage recommandé est l'acide sulfurique en solution (10 à 15%) pour les cuivreux et de l'acide chlorhydrique à 50% pour l'acier inoxydable. Cette brasure devient supraconductrice aux alentours de 65 m°K ce qui peut présenter des inconvénients dans certains cas.

Castolin 1020

Sa température de fusion est de 609-655°C. Sa composition est Ag 56-57 Cu 21 Sn 5-6 Zn 17. Sa résistance à la traction est de 33/40 kg/mm^2. Sa composition exempte de cadmium détermine une température d'évaporation plus élevée que celle des alliages habituels, à haute teneur en argent, ce qui rend possible certaines utilisations relevant de la technique du vide. Sa résistance à la corrosion est supérieure aussi grâce à un potentiel électrochimique plus noble, dû à l'addition d'étain. Aucune transition supraconductrice n'est connue.

DODUCO CN 411

La brasure Doduco CN 411 est l'eutectique cadmium zinc, fondant à 266°C. Sa résistance à la traction est de l'ordre de 16 kg/mm^2.

Doduco CN 402

La zone de fusion de la Doduco CN 402 qui est dérivée de la CN 411 est 272-307°C. Sa résistance à la traction est de 21 kg/mm^2. L'addition d'argent dans la brasure augmente fortement sa mouilliabilité et son inaltérabilité. Sa température de transition supraconductrice est inférieure à 1 Kelvin. Cette soudure est très utile à cause de sa solidité et de sa température de fusion intermédiaire. Son application se fait au fer à souder, ce qui évite de surchauffer les pièces et permet un guidage de la brasure. Il en sera de même pour toutes les brasures suivantes, qui sont également appelées d'une manière peu correcte soudures tendres.

Castolin 157

La brasure Castolin 157 est l'alliage eutectique étain-argent. Elle fond à 220°C. Sa résistance à la traction est de l'ordre de 4,6 kg/mm^2. Sa composition est : Sn 96,5% Ag 3,5 % . Elle est extrêmement fluide, possède une bonne mouillabilité et résiste bien à la corrosion.

Tinea 63

La brasure Tinéa 63 est l'eutectique étain-plomb. Elle fond à 183°C. Sa résistance à la traction est de l'ordre de 3 kg/mm^2. Sa composition est Sn 63% Pb 37% . C'est la soudure radio-électrique habituelle. Elle est moins fluide que la Castolin 157.

Doduco CN 124

La brasure Doduco CN 124 a une zone de fusion aux alentours de 158°C Sa résistance à la traction est de 6,6 kg/mm^2.

Indalloy n° 5

L'Indalloy n° 5 a une température de fusion de l'ordre de 138°C. Sa résistance à la traction est de 3 kg/mm^2. Le flux utilisé pour cette brasure ainsi que pour la suivante est le flux Indalloy n° 2 spécial acier inoxydable.

Indalloy n° 2

L'Indalloy n° 2 (In 50% Sn 50%) a un intervalle de fusion de 117-125°C. Sa résistance à la traction est de 1,14 kg/mm^2. Nous utilisons cette

soudure pour des réparations sur des pièces qui ne peuvent pas être chauffées et la considérons comme extrêmement fiable.

Métal de Wood

Le métal de Wood (Bi 50% Pb 25% Sn 12,5 % Cd 12,5%) a une température de fusion de 72-73°C. Sa résistance mécanique est très faible. Mais son application à la soufflette à air chaud est pratique et permet des démontages aisés.

Toutes ces soudures à bas points de fusion deviennent supraconductrices comme les métaux constitutifs : (9)

Métal	T supra (Kelvin)	H_o (Oersted)
Cd	0,56	30
In	3,40	290
Pb	7,2	800
Sn	3,722	305
Zn	0,86	52

Ces brasures sont toutes utilisées au laboratoire pour la fabrication d'appareils cryogéniques. Les plus courantes sont la Castolin 1020 (brasure à l'argent), la CN 402 (eutectique cadmium - zinc avec des traces d'argent), la Castolin 157 (eutectique étain-argent), la Tinéa (eutectique étain-plomb), l'Indalloy 2 (eutectique étain indium).

La brasure à l'argent est utilisée chaque fois que des joints non démontables doivent être réalisés. L'eutectique cadmium-zinc est une brasure solide qui peut être finie au fer à souder. La différence d'utilisation principale entre l'eutectique étain-argent et l'eutectique étain-plomb est que le premier est beaucoup plus fluide que le second. L'eutectique étain-indium fond à 120°C et mouille bien l'acier inoxydable : il est utilisé de préférence au métal de Wood pour les assemblages délicats. Le métal de Wood nécessite un étamage préalable des pièces à assembler.

Des assemblages étanches réalisés avec ces soudures, ont été cyclés thermiquement d'une manière brutale entre la température ambiante et celle de l'azote liquide plus de 500 fois : aucune défaillance n'a été constatée.

Les défaillances au vieillissement que nous avons observées proviennent de deux causes :

- contraintes mécaniques trop importantes sur des brasures tendres; le joint casse par fatigue mécanique.
- phénomènes de corrosion, et en particulier la corrosion galvanique; il faut signaler à cet égard que les brasures inox-cuivre sont très sujettes à ce phénomène.

1.22. RESISTANCES CHIMIQUES DES BRASURES

Nous avons fait des essais dans le but de déterminer les méthodes de nettoyage sur des joints brasés de différentes natures.

Les brasures CN 402 - 411 et 124 ne résistent pas à une action prolongée aux acides. Par contre, ils résistent au chlorure d'ammonium et au carbonate de sodium, si la concentration n'est pas trop importante.

Les alliages Castolin 18- 1802- 1020 et 157 offrent peu de résistance aux acides chlorhydriques et mélange fluonitrique. Les alliages 1802-157 et 1020 résistent bien à la soude caustique ainsi qu'à l'ammoniac sec mais pas la 18.

Pour le brasage des aciers inoxydables, les alliages 1020 et 157 sont à préférer du fait de leur bonne tenue à la corrosion galvanique. Les brasures Indalloy n° 2 et n° 5 résistent bien aux alcalis. Je vais maintenant aborder la question primordiale de la résistance des différents matériaux à la corrosion.

1.23. L'UTILISATION DES FLUX ET LA CORROSION

a) La corrosion (10)

De nombreux processus de corrosion sont des phénomènes électrochimiques. Il y a apparition d'un pôle et la corrosion subie par l'anode est I/F, I étant l'intensité du courant et F le nombre de Faraday. Dans les phénomènes de corrosion le courant I est causé par une force électromotrice fournie par le métal lui-même. Il est connu que l'énergie nécessaire pour arracher un électron d'un métal est variable. En général ce départ de l'électron nécessite beaucoup plus d'énergie pour un métal noble que pour un métal courant.

Si deux métaux comme le cuivre et le zinc sont en contact, le cuivre

aura tendance à absorber des électrons du zinc jusqu'à ce que la différence de potentiel provoquée par le transfert des électrons soit suffisante pour s'opposer au passage de ceux-ci. Il est bien entendu impossible d'engendrer un courant électrique continu dans un circuit composé seulement de cuivre et de zinc à la même température. Mais si le circuit entre le cuivre et le zinc est fermé par une solution comme KCl un courant apparaît, l'énergie requise provenant de transformations chimiques. Nous avons alors une pile.

Examinons quelques cas pratiques de corrosion. Voyons d'abord le cas d'un métal protégé par une couche de son oxyde. Supposons qu'il y ait une fissure dans cette couche protectrice et que l'ensemble soit placé dans un électrolyte contenant de l'oxygène. Il se forme alors une pile ayant pour cathode la couche d'oxyde et pour anode le métal nu. La surface de l'anode étant beaucoup plus petite que celle de la cathode la corrosion en est d'autant plus rapide. Le phénomène est identique pour deux métaux différents en contact par l'intermédiaire d'un électrolyte ce qui explique les ruptures de pièces observées lors de la soudure de métaux différents (en particulier inox - cuivre).

b) Action des flux

Les flux ont pour but de permettre un bon accrochage de la brasure sur le métal de base. Ce métal est en général protégé par une couche d'oxyde. Le flux peut donc agir de deux manières différentes. Il peut soit régénérer le métal de base par désoxydation, soit former un composé avec l'oxyde de la couche protectrice, composé qui est soluble dans un excès de flux.

Les flux utilisés pour le métal de Wood ainsi que pour les CN 402 CN 411 - Castolin 157 - CN 124 sont des flux Doduco n° 3, n° 7, n° 8. Le flux n° 3 est préconisé pour les métaux non ferreux. Il est peu corrosif et se dissout dans l'alcool éthylique ou le trichloréthylène. Les flux n° 7 et n° 8 sont fortement corrosifs. Ils sont tous les deux solubles dans l'eau. Ils sont utilisables pour tous les métaux (le n° 8 est recommandé pour l'acier inoxydable).

Examinons ces différents flux plus en détail.

Castolin 18-1802-1020

Le flux Castolin 18 est à base de composés boriques, les flux Castolin 1802 et 1020 étant à base de fluoborate alcalin. Ces 3 flux libèrent par chauffage des acides boriques qui ont la propriété de déplacer à chaud tous

les oxydes même les plus stables (alumine). Ils agissent donc en régénérant le métal de base. L'inconvénient de ces flux est leur température d'activation élevée (de l'ordre de 775°C).

Castolin 157 - Doflux n° 7 et 8

Ces flux sont à base de chlorure de zinc qui lui agit selon le second mode. $Zn\ Cl_2$ libère à chaud l'acide chlorhydrique qui réduit les oxydes en chlorures. Ceux-ci sont solubles dans un excès de $ZnCl_2$. Le chlorure de zinc est donc l'élément actif du flux.

Le flux Castolin 157 est du chlorure de zinc. Dans les Doflux n° 7 et n° 8 est ajouté du chlorure d'ammonium dont la température de fusion est plus basse que celle du chlorure de zinc, ce qui abaisse la température d'activation du mélange. Le Doflux n° 8 contient de plus de l'acide fluorhydrique ce qui rend l'action du flux plus rapide du fait du pouvoir de réducteur puissant de cet acide à chaud .

Doflux n° 3

Ce flux est à base de collophane activée. Il est donc peu corrosif. Son action est lente et son utilisation ne peut être envisagée que pour le cuivre. Il est probablement activé par de l'acide lactique qui est connu mais peu employé comme flux du fait de son prix élevé.

Indalloy n° 2

Le flux Indalloy n° 2 se présente sous forme d'une pâte visqueuse. Son action est efficace et se produit à basse température (température d'activation 102 à 320°C). Nous ne connaissons pas sa composition. Il est classé par le fournisseur comme moyennement corrosif.

c) Utilisation des flux et nettoyage des pièces (11)

Je viens donc de passer en revue les brasures et les flux que nous avons décidé d'utiliser au laboratoire. D'après les données connues de résistance chimique de l'acier inoxydable, tous ces flux sont corrosifs et sont en général générateurs de piqûres. De même ils attaquent le cuivre et le laiton. L'emploi de ces flux nécessite donc un nettoyage soigné des pièces. La passivation de l'acier inoxydable n'est pas possible car ce traitement dissout littéralement les brasures employées.

En ce qui concerne les flux à base de bore, un bon brossage avec de l'eau permet d'éliminer la plupart des résidus. Ce nettoyage doit être soigneux, mais il ne demande pas de précautions particulières.

Le chlorure de zinc, lui, pose beaucoup plus de problèmes. En effet les résidus qu'il laisse sont pratiquement insolubles dans l'eau. De plus le flux ayant provoqué la disparition de la couche d'oxyde sur une partie du métal et le flux étant un électrolyte (bien que faiblement soluble) il peut se produire une corrosion telle que celle décrite précédemment d'où la nécessité du nettoyage soigné des pièces.

La méthode utilisée est alors mécanique et chimique. Elle nécessite donc beaucoup de soins et de temps. On procède d'abord au nettoyage mécanique à l'aide de petites brosses à fils de laiton entraînées par un petit moteur électrique. Vient ensuite le nettoyage chimique. La pièce est trempée dans un bain d'acide chlorhydrique. Cet acide en excès déplace l'équilibre $Zn\,Cl2 + H2O \rightleftharpoons Zn\,(O\,HCl) + HCl$ et permet la reformation de ZnCl2 qui lui est soluble. Un rinçage à la soude retire alors les excès d'acide chlorhydrique. Un rinçage à l'eau retire tous les dépôts des produits solubles. Un rinçage au méthylal termine le traitement. Un brossage mécanique donne un bel aspect de fini aux pièces et permet de retirer les traces de séchage. C'est après ce laborieux nettoyage que la pièce offre le plus de sécurité au point de vue de la corrosion.

1.3. CHOIX DES MATERIAUX METALLIQUES : CONCLUSIONS

En résumé, notre choix s'est fixé sur les matériaux suivants :

- acier inoxydable très bas carbone, stabilisé au molybdène (Z2 CND 17/12). Cet acier est néanmoins encore susceptible à la corrosion par piqûre. Il est souhaitable qu'il soit passivé. Les flux corrosifs doivent être très soigneusement nettoyés. Les tubes doivent avoir été soigneusement hypertrempés,

- cuivre électrolytique : il faut faire attention à la maladie de l'hydrogène, cause de fuites très difficiles à déceler.

- les laitons, maillechort, cupro-nickels peuvent être utilisés avec circonspection. Les tubes capillaires en cupro-nickel sont d'un emploi commode.

- la soudure à l'arc sous argon est le meilleur procédé d'assemblage de l'acier inoxydable. Il existe toute une gamme de brasures très fiables ;

leur emploi nécessite certaines précautions. Les chocs thermiques infligés à des joints bien conçus ne semblent pas les dégrader.

- Les phénomènes de corrosion ne sont pas complètement éliminés par l'emploi de techniques de nettoyage et de matériaux bien choisis. Il faut éviter l'humidité et nettoyer les montages de temps à autre.

Devant ces ennuis de résistance chimique des matériaux métalliques utilisés, des recherches ont été effectuées en vue du remplacement de ces matériaux par des matériaux plastiques. Les essais ont porté sur trois domaines :

- le remplacement des brasures par des collages qui ne nécessitent aucun nettoyage
- le remplacement des pièces métalliques par des pièces moulées
- la réparation des pièces présentant des petites fuites par une couche de peinture.

1.4. MATERIAUX NON METALLIQUES (12)

1.41. COLLAGES

Il est intéressant pour faciliter le montage, éviter l'emploi du chalumeau et éliminer le nettoyage des pièces, de chercher à remplacer les soudures et brasures par des collages. Les essais de collage sont effectués sur des bouchons collés sur un tube en laiton à l'aide des résines essayées. La tenue du collage est testée à l'aide d'un détecteur de fuite à gaz traceur hélium.

Le premier test est fait à température ambiante. Ensuite le tube est plongé brutalement dans l'azote liquide (77 K) et une nouvelle détection de fuite est effectuée. Le matériau est considéré comme utilisable s'il résiste à une cinquantaine de chocs successifs sans qu'il y ait fuite ni à la température de l'azote liquide ni à l'ambiante.

a) Les différents types d'adhésifs

- Pierlon BC 60 (13)

C'est un adhésif ciment oragnique à base de résine epoxy et de polyamide. Sa résistance au cisaillement est de 150 kg/mm^2 à 20°C et de 40 kg/mm^2 à 80°C (ceci pour un film de 1/10 de mm d'épaisseur). Le Pierlon BC 60 (13) supporte en permanence 120°C. Il se présente sous deux formes :

- l'une en deux pâtes à mélanger
- l'autre en un seul produit polymérisant à chaud (160°C pendant vingt minutes)

Le Pierlon BC 60 casse souvent au cours des premiers chocs thermiques et doit être rejeté. Un autre essai a été effectué avec le Pierlon BC 60 HT (haute température). Celui-ci est un composé époxy silicone réticulé par un mélange de polyamides. Sa résistance à la traction ou au cisaillement est de 70 kg/mm^2 (ceci même après un vieillissement de 500 heures à 200°C). Sa tenue est meilleure que celle observée pour le Pierlon BC 60 normal, mais elle ne satisfait pas à nos critères.

- Stycast 2850 GT (14)

Cette résine a une température de distorsion de 175°C (avec le catalyseur n° 11). Sa résistance à la traction est de 590 kg/mm^2. Elle est chargée par un produit qui abaisse son coefficient d'expansion à 25,2 x 10^{-6} cm/cm/°C. Sa conductibilité thermique est de 34,7 x 10^{-4} cal/sec/cm^2°C D'après ces chiffres, cette résine paraît bonne (surtout du fait de son faible coefficient d'expansion). Les résultats le confirment. Les collages ont résisté à tous les tests effectués.

- Epibond 100 A (15)

Cette résine peut être utilisée comme colle en couche mince et donne des résultats comparables à ceux obtenus pour des pièces moulées. Une description précise de cette résine est donnée dans le paragraphe 1.42.

- Epoxylite 88-39 (16)

Cette colle est appelée cryogénique par le fabricant. Elle se présente sous la forme de deux parties; l'une solide, l'autre liquide. Lorsque ces composants sont mélangés dans la proportion de 11 (solide) pour 100 (liquide), la prise se fait en 24 heures à l'ambiante et en 1/2 heure à 200°C. Les essais que nous avons faits n'ont pas été excellents et nous l'avons abandonnée.

b) Du remplacement des brasures par des adhésifs

Certaines pièces de l'appareil ont donc été collées par des adhésifs. Mais cette pratique a un inconvénient : en effet si une brasure est mal faite ou si une pièce est défectueuse, il est possible d'y remédier soit en refaisant la brasure, soit en déssoudant la pièce et en la remplaçant. On

en est quitte pour un nettoyage sérieux des pièces. Par contre si toutes les pièces sont collées il y a un problème. La seule méthode pour défaire un de ces collages est de détruire la résine à l'aide de produits spéciaux. (Désolv 292 - Chemstrip). Celà n'offre pas de difficulté. Mais il faut alors faire un nettoyage extrêmement sérieux de ce produit car il interdit tout nouveau collage. A cause de cette difficulté le principe du collage n'a été retenu que pour de grosses pièces fixes.

Le montage de la partie froide de l'appareil a été effectué par brasures avec un certain nombre de mini brides démontables à joints d'indium. Ce système permet un remplacement rapide de partie de l'appareil et une accélération du rythme des expériences.

1.42. PIECES MOULEES

L'utilisation du thermomètre à résonance magnétique nucléaire pour mesurer la température de la chambre de mélange impose l'emploi de matériaux non conducteurs pour éliminer l'échauffement par courant de Foucault. Cette chambre de mélange doit comporter deux ou trois sorties formées par des tubes capillaires et de nombreux passages électriques. La fabrication de ces passages électriques peut d'ailleurs se faire en même temps que la chambre de mélange et à partir des mêmes résines que je vais maintenant passer en revue.

Résine C d F Chimie (17)

La formule de la préparation utilisée est la suivante :

Résine Lopox MB 200 (100 parties en poids) (17) - Silice en poudre (200 parties en poids) (18) - Durcisseur Merginamid LA 500 (45 parties en poids) (19) . Le "pot life" de ce mélange est de 4 heures. Le temps de durcissement est de 6 à 8 heures. Les propriétés finales sont obtenues au bout de 24 heures.

Le catalyseur Merginamid a l'avantage de donner des résines souples. La silice a pour but d'abaisser le coefficient de dilatation linéaire de l'ensemble. Nous escomptions que des résines souples à faible coefficient de dilatation pourraient donner satisfaction. Des chambres de mélange ont été réalisées à l'aide de cette résine, mais leur tenue a été lamentable. Au premier choc thermique, la chambre présentait de nombreuses fissures du fait certainement du gradient de température. Dans le but de minimiser l'influence de ces gradients nous avons alors remplacé une partie de la silice par

de la poudre de cuivre. La résistance aux chocs thermiques a été sensiblement améliorée, ce qui confirme notre hypothèse, mais elle n'était pas suffisante.

- Stycast 2850 GT (14)

Cette résine a déjà été décrite dans le paragraphe 1.41, sur les adhésifs, mais contrairement à notre attente, elle n'offre pas une résistance remarquable sous forme moulée.

- Epibond 100 A (15)

Ce produit se présente sous forme de poudre homogène dans laquelle le catalyseur est dispersé. L'avantage de cette présentation réside dans le fait qu'elle est prête à l'emploi. Il suffit de chauffer la poudre pour provoquer la réticulation. Elle est polymérisée par un anhydride d'acide et est sensible à l'humidité.

Température	Temps maximum de cuisson
121°C	24 heures
138°C	6 heures
149°C	3 heures
177°C	1 heure
204°C	1/2 heure

Sa résistance à la traction dans le meilleur des cas (accrochage sur de l'aluminium) est de 315 kg/cm^2. Sa température maximale de service est de 95°C, mais elle supporte 200°C pendant quelques instants. Son usinage contrairement aux autres résines (à cause des charges) est facile. Sa conductibilité thermique est apparemment bonne.

Cette résine a le défaut de ne polymériser d'une manière homogène, qu'en couche mince. Prévue à l'origine comme colle, elle est difficile à mouler sans occlusion. Ceci est dû au fait que facteur de remplissage de la poudre brute n'est que de 1/3. Une technique de moulage qui donne de bons résultats consiste à faire fondre la poudre sur un plan incliné. Une fois fondue elle coule dans une gouttière et s'accumule dans le moule; le produit obtenu est ainsi débarassé de toutes les grosses bulles (20). Les défauts microscopiques ne sont pas gênants. Cette méthode est beaucoup plus

commode à mettre en oeuvre qu'un dégazage sous vide; elle donne également des résultats plus satisfaisants.

Une chambre de mélange a donc été réalisée à l'aide de ce produit. Elle a subie plus de cent chocs thermiques à l'azote, ceci sans présenter la moindre fuite. Mais après de nombreux fonctionnements du réfrigérateur, la chambre mélange a cassée lors d'un choc à l'azote ce qui laisserait prévoir des problèmes de vieillissement de l'épibond. Des passages électriques ont également été réalisés avec cette résine (21). Ils ont été recuits à 200°C pendant 30 minutes et donnent entière satisfaction. Leur fabrication est donc aisée; usinage de l'acier, mise en place des fils et cuisson prennent en tout 2 heures.

- Araldite B avec durcisseur HT 901 (22)

C'est une résine époxyde non modifiée ne contenant pas de solvant de haut poids moléculaire donc solide à la température ambiante. Le mélange de la résine et du durcisseur s'effectue à 120-125°C (100 parties en poids d'araldite B pour 30 parties du durcisseur HT 901). Ce mélange a la propriété de ne pas dégager de constituants volatils au cours de sa mise en oeuvre, ce qui évite la formation de bulles. Le durcissement s'effectue suivant le tableau ci-dessous :

°C	Durée minimale
120	24 heures
130	14 heures
140	10 heures
160	7 heures
180	3 heures

En doublant les temps de durcissement on peut améliorer les propriétés thermiques des pièces. Ce sont des températures de durcissement de l'ordre de 140 à 160°C qui donnent les meilleurs résultats. Il faut faire attention au début du durcissement car la réaction est exothermique. Le début du durcissement doit donc se faire à 120°C. Un recuit des pièces peut être bénéfique. L'ensemble obtenu est très facilement usinable. La tenue aux chocs thermiques de cette résine peut être considérée comme assez bonne, sans être parfaite. La fabrication demande les mêmes précautions que

celle de l'Epibond 100 A sans donner des résultats aussi satisfaisants.

- Epoxylite 801 avec catalyseur 7 B (16)

L'époxylite 801 se présente sous la forme d'un liquide pâteux de couleur bleue. Le catalyseur 7 B est ajouté dans la proportion de 14% (ce catalyseur donne une résine à haute température de distorsion : 150°C) Le "pot life" du mélange est de 2 heures à l'ambiante. La résine réticule à 120°C pendant 8 heures. Bien que cette résine soit suivant le fabricant destinée aux usages cryogéniques, sa tenue suivant nos critères n'est pas satisfaisante.

- Epikote 828 + Versamid 125 (23)

Les proportions sont les suivantes :

- Epikote 828 150
- Versamid 125 100

La réaction se fait à 70°C. Cette résine a été utilisée pour des encapsulations de bobines cryogéniques mais les résultats des tests d'étanchéité ne sont pas probants.

1.43. VERNIS

Nous avons étudié le problème du colmatage des fuites par les vernis offrant une tenue acceptable à basses températures.

Deux vernis ont été testés. Ces vernis ont été choisis très souples afin de leur permettre de suivre les retraits des métaux à froid.

- Première formule

BASE	
Résine Lopox 500 (17)	58,9
Méthylcellosolve ou éther monométhylique de l'éthylène glycol	19,6
Butanol	3,75
Toluène	17,5

DURCISSEUR	
Résine Lopox 500 (17)	33
Méthylcellosolve	20
Toluène	40
Diéthylènetriamine	7

Chaque mélange doit être fait à chaud car le Lopox 500 est solide jusqu'à 100°C. Le vernis obtenu est souple mais perd cette propriété à froid. Il casse facilement au choc thermique mais reste à peu près convenablement collé.

- Deuxième formule

La base est identique à la précédente, mais le durcisseur a la formule suivante :

Merginamid L 190 (19)	75
Butanol	12,5
Toluène	12,5

La dissolution se fait à froid. Il faut 15 parties de la base pour 8,5 parties du durcisseur. Ce vernis est plus souple que le précédent et son sèchage plus lent. Mais sa résistance est identique au précédent.

Ces vernis ne peuvent être considérés que comme des pis-aller. Il ne paraît pas possible d'effectuer des colmatages de fuite durables sur des appareils cryogéniques à l'aide des résines dont nous disposons actuellement. Il serait pourtant souhaitable de pouvoir effectuer des réparations de fortune quand une fuite se déclare; des recherches technologiques dans cette direction qui aboutiraient à des résultats satisfaisants seraient les bienvenus.

1.44. MATIERES PLASTIQUES A USINER

- Le teflon

Le téflon résiste bien aux très basses températures. Mais il offre de nombreux inconvénients, le premier est qu'il flue à la température ambiante. Aussi, bien que son usinage soit très facile, la fabrication de pièces bien ajustées est délicate. Le téflon présente l'inconvénient d'être poreux à la température ambiante vis à vis de l'hélium. Ce phénomène a tendance à disparaître au-dessous de la température de l'azote liquide (77 K) mais il ne simplifie pas le problème des tests d'étanchéité.

- Nylon, Banlon, Lucoflex, Plexyglas

Ces produits offrent des résultats très variables. En particulier la pièce peut se fissurer de manière imprévisible. Il semble que celà provienne de la forme et de la masse des pièces. L'emploi de ces matériaux n'est donc pas recommandé.

- Polysulfone (24)

Le Polysulfone a été utilisé pour faire des chambres de mélange. La tenue est bonne. Elle est identique à celle du produit décrit ci-après (Makrolon). Les propriétés sont identiques pour les deux, mais le Makrolon offre l'avantage de pouvoir être collé.

- Polycarbonate (Makrolon) (24)

Ce produit présente de nombreuses qualités. La première est qu'il s'usine facilement.(Il existe une variété chargée avec des microbilles de verre qui s'usine difficilement). Sa résistance à la traction est de 6 kg/mm^2. Sa résilience ainsi que son module d'élasticité à la torsion sont indiqués sur la figure n° 5 (25) . Sa conductivité calorifique est de $4,6 \times 10^{4}$ cal/cm/s/°C. Son coefficient linéaire de dilatation thermique est de 70×10^{-6}. Sa résistivité est de $2,10 \times 10^{16}$ ohm cm^2/cm Sa résistance chimique n'est que moyenne : il est sensible à beaucoup de solvants organiques.Il existe une colle qui permet de le coller à lui-même.

Une chambre de mélange a été réalisée avec ce produit par usinage de la boite puis du couvercle et collage. Une autre chambre a été faite avec un couvercle en cuivre, l'étanchéité étant assurée par un joint d'indium. Ces deux pièces ont subi un grand nombre de cycles thermiques et donnent entière satisfaction.

1.5. CHOIX DES MATERIAUX NON METALLIQUES : CONCLUSIONS

Des essais que nous avons effectués, il résulte que l'Epibond 100 A nous a donné les résultats les plus satisfaisants. Or on remarque que sa température de distorsion est la plus élevée. Il apparaîtrait donc que ce sont les résines qui supportent les hautes températures qui présentent les meilleures caractéristiques à froid. Il s'ouvre donc dans cette voie un large domaine de recherches.

En particulier une résine du type Lopox 200 (17) catalysée par le produit expérimental Lo (17) devrait donner de bons résultats. La formule de ce mélange est la suivante :

Résine Lopox 200	100
Produit Lo	35
(cyclopentane tétracarboxylic dianhydride CPDA)	
Accélérateur DMP 30	0,5

Le durcissement de cette résine s'effectue à 120 - 140°C pendant 6 à 12 heures. Ce durcissement est suivi d'un recuit de 24 heures à 200°C. La température de distorsion dépasse alors 250°C. De plus des progrès récents ont permis de réticuler les résines époxydes à l'aide de polyimides. Les produits obtenus auraient une température de distorsion de l'ordre de 500°C; le kapton à base de polyimides est connu pour son emploi comme joint à basses températures.

Dans cette direction s'ouvre donc un vaste domaine qui permet de penser que dans un avenir prochain les résines remplaceront les matériaux cryogéniques classiques qui présentent tant de défauts, en particulier leur faible résistance chimique aux divers agents corrosifs. En ce qui nous concerne l'utilisation des résines s'est limitée à l'Epibond 100 A qui a cependant offert quelques déconvenues au bout d'un an d'utilisation et au Makrolon qui offre l'avantage de ne pas avoir à faire de préparation : il suffit d'usiner la pièce.

REFERENCES

(1) P. Litherland PEE the properties of metallic matérials at low temperatures. Chapmann and Hall (1950)

L. Colombier, J. Hochmann, Aciers inoxydables, aciers réfractaires Dunod (1965)

Behavior of materials at cryogenic temperatures ASTM special technical publication n° 387

F. Gobin, Cours de métallurgie E.N.S.M.

(2) D.A. Wigley, Cryogenics 8, 3 (1968)

(3) F. Gobin, Revue corrosion et anticorrosion Avril (1961)

(4) Catalogue des aciers spéciaux Ugine

(5) J. Kerrisk, Thèse Université New Mexico (1968)

Compendium of properties of materials at low temperatures Wadd technical report 60-56 part 2

V.J. Johnson p. 3, 291 NBS (1960)

R. Berman, Proc. Roy. Soc. (London) (1952) A 65 1029

(6) H.C. Rogers Sciences 159 , 1057 (1968)

(7) Propriétés et applications de l'alliage Monel 400

Groupe international du nickel

Résistance à la corrosion du nickel, du Monel et des cupro-nickels

Centre d'information du nickel

(8) H.H. Manko, Solders and soldering McGraw Hill Inc.

J. Glasser, W.E. Few , Study of low melt brazing alloys

AFML Project n° 8-250 NBS (1964)

D.M. Berince Machine design Septembre 1963-69

H.E. Pattee Machine design Septembre 1963-75

The joining of metals Institution of metallurgist Juin 1957

W.R. Lewis, Notes sur les soudures à l'étain

Centre d'information de l'étain

(9) W.H. Warren, W.G. Bader, Rev. Sci. Inst. 40 , 180 (1969)

Properties of superconducting materials NBS circular

(10) U.R. Evans, an introduction to metallic corrosion

Edward Arnold and Co

(11) B. Nekrassov, Chimie minérale MIR Moscou (1967)

(12) H. Lee, K. Neville, Epoxy resins McGraw Hill Inc. (1957)

R.B. Seymour, Ind. Eng. Chem. 60, 30 (1968)

T. Ashworth, M. Rechowicz, Cryogenics, 8 , 361 (1968)

R.F. Robbins, J. Macromol. Sci. Chem. A3(7) 1367 (1969)

(13) Sofac, 57, rue N.D. de Nazareth, 75 003 Paris

(14) Emerson et Cumming France, 65-67, avenue Gambetta 75 020 Paris

(15) Furane Plastics 5121 San Fernando RD West Los Angeles California 90 039

E.V. Roberts, 9601 W. Jefferson Blvd, Culver City, CA 90 230.

(16) The epoxylite Corporation 1428 North Tyler Avenue P.O. Box 3397 South el Monte, California 91 733

(17) Cdf Chimie, 22, rue de la Trémoille, 75 008 Paris

(18) Sifraco, 11, rue de Téhéran , 75 008 Paris

(19) Omya S.A. , 30, rue Saint-Augustin , 75 002 Paris

(20) B.L. Berman, R.P. Madding, J.R. Dillinger Rev. Sci. Inst. 39 , 1214 (1968)

A.C. Mota, J.C. Wheatley , Rev. Sci. Inst. 40 379 (1969)

(21) W.C. Roach, J.C. Wheatley, A.C. Mota de Victoria Rev. Sci. Inst. 35, 634 (1964)

(22) Silitro, 22, rue de l'Oasis, 92 800 Puteaux

(23) Société d'Exploitation des Adhésifs, avenue de l'Ile de France Vernon - 27.

(24) Gachot S.A., B.P. 14 95 230 , Soisy/Montmorency

(25) Article de revue basé sur le rapport Plastic Report 30 Picatimy Arsenal, Materials Engineering 67 52 (1968)

A P P E N D I C E

DILATATION THERMIQUE DES SOLIDES A BASSE TEMPERATURE (1)

La définition du coefficient de dilatation thermique linéaire est : $\alpha = \frac{1}{3r} \frac{\partial V}{\partial T}$. Les solides peuvent être classés, du point de vue de la dilatation thermique, en trois catégories : les cristaux, les métaux et les corps amorphes.

Dans les corps amorphes, les atomes vibrent autour de points disposés d'une manière chaotique. Ces corps peuvent être considérés comme en équilibre métastable et leur entropie au zéro absolu n'est pas nulle mais égale à une constante S_o que l'on pourrait appeler entropie de cristallisation. Les calculs effectués pour les cristaux peuvent donc être utilisés pour les corps amorphes.

Les métaux se différentient des cristaux par la présence d'électrons de conduction. Leur dilatation thermique sera donc la somme de deux contributions, l'une due au réseau et l'autre aux électrons.

1) Dilatation des cristaux, partie de la dilatation des métaux due au réseau atomique (2)

L'énergie libre du cristal est

$$F = U - TS \qquad \text{avec} \qquad P = - \left. \frac{\partial F}{\partial V} \right|_T$$

$$V = -T^2 \left. \frac{\partial (F/T)}{\partial T} \right|_V$$

Soit le cristal à 0° ; on le porte à la température T en maintenant son volume constant par application d'une pression extérieure; puis on supprime cette pression, le volume varie jusqu'à ce que l'énergie libre soit minimale. Soit F_o l'énergie libre du système au volume initial, l'énergie libre au volume final peut être développée en fonction de la dilatation ΔV.

$$F(T) = F_o(T) + \Delta V \; F'_o(T) + \frac{(\Delta V)^2}{2} F''_o(T) + \ldots$$

$$\text{avec} \quad F'_o(T) = \left. \frac{\partial F}{\partial V} \right|_T$$

$$F''_o(T) = \left. \frac{\partial^2 F}{\partial V^2} \right|_T$$

Introduisons β_T la compressibilité isotherme

3. $$\beta_T = -\frac{1}{V}\left.\frac{\partial V}{\partial P}\right|_T = \frac{1}{V}\left.\frac{\partial^2 F}{\partial V^2}\right|_T = \frac{1}{V}\varphi(T)$$

Au volume d'équilibre, F est minimale on a donc

$$\left.\frac{\partial F}{\partial V}\right|_T = 0 = -P$$

Développons F' en puissance de ΔV

4. $$\left.\frac{\partial F}{\partial V}\right|_T = F'_0(T) + \Delta V F''_0(T) + \cdots = 0$$

Soit

5. $$\frac{\Delta V}{V_0} = -\frac{F'_0}{V_0 F''_0} = -\frac{F'_0}{\beta_T} \quad \text{d'où} \quad \omega = -\frac{1}{3\beta_T}\frac{\partial^2 F_0}{\partial V \partial T}$$

L'énergie U et l'entropie S du solide peuvent être calculées à l'aide du modèle de Debye. Ce modèle est valable dans le cas où la température est très inférieure à la température de Debye du corps considéré. Pour les corps très isotropes à structure en chaîne ou en couche, il existe plusieurs températures de Debye, la théorie s'appliquera alors pour $T \ll \Theta_{Dm}$, où Θ_{Dm} est la plus petite des températures de Debye du corps. Les températures de Debye sont presque toutes supérieures à 50 K, à la température de l'hélium liquide; l'approximation est donc valable.

Elle conduit à l'expression suivante pour la dilatation thermique

6. $$\alpha = \gamma \frac{C}{3\beta_T V} \qquad \gamma = -\frac{\partial \ln \Theta_D}{\partial V}\Big|_T$$

C est la chaleur spécifique ($C_p \simeq C_v$ à basse température)

γ est appelée constante de Grüneisen. Elle est indépendante de la température dans le domaine de validité de la théorie de Debye.

D'après les équations de Maxwell, on a :

$$\left.\frac{\partial P}{\partial T}\right|_V = \left.\frac{\partial S}{\partial V}\right|_T$$

mais $T \longrightarrow 0 \quad \left.\frac{\partial S}{\partial V}\right|_T \longrightarrow 0$

Donc à basse température P est une fonction de V uniquement et β également.

De 6 on peut donc déduire que α varie avec la température comme la chaleur spécifique du corps : celle-ci étant proportionnelle au cube de la température à basse température on a donc :

7. $$\alpha = AT^3$$

2) Cas des métaux (3)

Pour les métaux la théorie précédente ne donne que la contribution du réseau à la dilatation thermique, il convient de rajouter un terme électronique qui sera prépondérant à basse température.

L'énergie totale d'un métal peut s'écrire comme la somme d'un terme dû au réseau et d'un terme dû aux électrons

8. $$F(V,T) = F_D(V,T) + F_e(V,T)$$ F_D due au réseau, F_e due aux électrons

L'évaluation de la contribution des électrons à l'énergie libre est classique et conduit au résultat suivant pour α_e, partie électronique de la dilatation thermique:

9. $$\alpha_e = \frac{1}{3B_T}\left[\frac{\pi^2}{6} k^2 T\, g(\mu_F) + \frac{4\pi^4}{45} k^4 T^3 g'(\mu_F)\right]$$

où g est la densité d'état par unité de volume, μ_F le potentiel chimique au niveau de Fermi et k la constante de Boltzmann. La dilatation thermique varie en température comme la chaleur spécifique.

La dilatation thermique du métal est donc donnée par :

10. $$\alpha = \alpha_D + \alpha_e = AT^3 + BT$$

Exemple

Pour le cuivre $A = 2{,}7\ 10^{-11}$, $B = 2\ 10^{-10}$ réf. (2)

le fer $A = 1{,}1\ 10^{-11}$, $B = 2{,}9\ 10^{-11}$

3) Cas des substances plastiques

Les substances plastiques en chaîne se comportent comme des cristaux si la température est inférieure aux températures "d'anomalie". Ces températures étant toutes supérieures à 100 K, on peut considérer à basse tempé-

rature la dilatation de ces substances comme proportionnelle au cube de la température. A plus haute température , il est possible d'estimer la dilatation thermique qui va toujours grossièrement comme le rapport de la chaleur spécifique à la compressibilité.(4)

Tableau des dilatations thermiques linéaires

Matériaux	$10^5 \frac{\Delta l}{l}$ entre 0 et 80K	$10^5 \frac{\Delta l}{l}$ entre 0 et 300K	α moyen entre 0 et 80 K en K^{-1}	Réf
Cuivre	25	339		(4)
Acier 304 L	14	304		(4)
Laiton à décolleter	34	397		(4)
Pyrex	1	57		(4)
Araldite 501	126	1107	12	(4)
Téflon	245	2406	24	(4)
Stycast 2850 GT	45	400	4,5	(5)
Epon 828	110	910	11	(5)
Epon 815	130	1230	13	(5)
Saphir	0	79		(6)
Graphite $\perp$	1	74		(6)
Graphite //	1	30		(6)
Polyester renforcé	34	291	3,3	(7)
Résine phénolique	109	889	10,6	(7)
Nylon	142	1450	14	(7)
Polystyrène	235	1566	23	(7)
Epibond 100 A	-	959		(8)
Brasure à l'argent	-	433		(8)
Soudure Sn.Pb.60/40	-	557		(8)
Métal de wood	-	582		(8)
Polycarbonate				
Polysulfone				

REFERENCES

(1) Cet appendice a été rédigé à partir d'une étude bibliographique effectuée par Monique Sudraud.

(2) H.M. Rosenberg
Low Temperature Solid State Physics
Clarendon Press (Oxford) 1963 p. 36.

(3) S. Visvanethan, Phys. Rev. 81 , 626 (1951)
L. Landau et E. Lifchitz, Physique Statistique
Editions Mir (Moscou - 1967) p. 257.

(4) R.J. Corruccini, Chem. Eng. Prog. 53, 262 (1957)

(5) W.O. Hamilton, D.B. Greene, D.E. Davidson,
Rev. Sci. Inst. 39 , 645, (1968)

(6) V. Arp. J.H. Wilson, L. Winrich, P. Sikora,
Cryogenics 2 , 230, (1962)

(7) R.B. Scott, Cryogenic Engineering, D. Van Nostrand, N.Y. (1959)
p. 331.

(8) P.F. Seligmann, R.E. Sarwinski,
Cryogenics 12, 239 (1972)

Chapitre 2

L E R E F R I G E R A T E U R

2.1. INTRODUCTION : LA PRODUCTION DES BASSES TEMPERATURES

La production du froid par dissolution est une méthode maintenant bien connue, comme je l'ai mentionné dans l'introduction. Le but de ce chapitre est de décrire sa mise en application dans l'appareil construit à l'Institut d'Electronique Fondamentale.

Cette méthode est fondée sur les propriétés des mélanges He_3-He_4 (1) Le diagramme des phases des solutions liquides He_3-He_4 est représenté sur le schéma n° 6. Au-dessous d'une certaine température A le mélange se sépare en deux phases, l'une concentrée en He_3, l'autre diluée. De même l'hélium 4 pur devient superfluide au-dessous de 2,17 K, c'est-à-dire que sa viscosité devient nulle.

Notre mélange initial gazeux (contenant 33% de He_3) arrive au pot dit à 1 K; sa température est en fait de l'ordre de 1,5 K, mais elle suffit pour condenser ce mélange qui remplit le réfrigérateur à dissolution proprement dit. Lorsque nous mettons en route le pompage sur le bouilleur, nous créons une distillation fractionnée du mélange qu'il contient, du fait que les liquides He_3 et He_4 n'ont pas la même tension de vapeur. C'est l'hélium -3 qui est pompé en priorité, circulé et réinjecté dans la chambre de mélange où par voie de conséquence sa concentration augmente. Le point B va donc se déplacer vers la courbe C (schéma n° 6) en ce qui concerne le liquide qui se trouve dans la chambre de mélange.

Par suite de l'évaporation forcée du mélange, la température du bouilleur va s'abaisser. Le mélange réinjecté passe au travers de ce bouilleur grâce à un échangeur en sortant du pot à 1 K. Sa température va donc s'abaisser de nouveau ainsi que celle qui règne dans la chambre de mélange. Ce phénomène va se prolonger jusqu'au moment où la température et la concentration du mélange correspondent au point A.

Arrivé à ce point se produit la séparation de phase dans la chambre de mélange. Considérons un schéma de celle-ci (schéma n° 7). A partir du point A se forme donc dans la chambre de mélange une séparation en deux phases, l'une concentrée en He_3, l'autre diluée. Ce phénomène est comparable à l'équilibre d'un liquide (He_3 concentré) avec sa vapeur (He_3 dilué). Du fait que nous pompons sur la phase diluée ceci revient à effectuer une évaporation (quasi-évaporation). Nous continuons donc d'abaisser la température de l'ensemble. Les points M et N (schéma n° 6) tendent alors à

descendre le long de la courbe. En raison de la distillation effectuée, la concentration en He_3 de la phase concentrée augmente. Dans la chambre, on fait passer l'hélium 3 de la phase concentrée (point M) à la phase diluée (point N) où il est repris pour une distillation augmentant à nouveau la concentration, ce qui déplace M vers M' entraînant ainsi un nouvel abaissement de la température. Le principe en lui-même indique un fonctionnement continu de l'appareil.

Comme nous venons de le voir, la séparation de phases au niveau de la chambre de mélange ne se fait qu'à basses températures. Elle ne peut donc avoir lieu que grâce à un environnement cryogénique qui sert de plus à l'isolation thermique de l'ensemble vis à vis de l'extérieur. L'appareil se composera donc de toute une partie auxiliaire dont le but sera la circulation des fluides (tuyauteries, pompes) ainsi que le contrôle du fonctionnement (températures, circulation). La description de l'appareil sera donc scindée, pour des raisons de commodité, en deux parties :

- la partie extérieure
- la partie froide

La partie extérieure comprend les vases d'isolement contenant les liquides cryogéniques ainsi que l'appareillage extérieur. La partie froide, quant à elle, est le coeur même de l'appareil. Sa construction fait appel à des techniques particulières.

Le présent chapitre comprend une dernière partie dans laquelle est décrit le fonctionnement pratique du réfrigérateur.

2.2. LA PARTIE EXTERIEURE.

2.21. ENVELOPPE EXTERIEURE (Schéma n° 8)

L'enveloppe extérieure sert à maintenir l'environnement cryogénique nécessaire au fonctionnement du réfrigérateur à dissolution. Le schéma n° 8 représente l'ensemble des enceintes qui sont nécessaires pour assurer cet isolement. Celles-ci sont au nombre de quatre et nous allons les décrire en détail.

a) Le vase dewar n° 1 : vide d'isolement ambiante azote

Comme toutes les enceintes que nous allons décrire elle est montée en acier inoxydable Z2 CND 17-12 soudée sous argon. Cette enceinte, formée par deux tubes de diamètres respectifs 314x318 - 290x292,4,est sous un vide poussé qui isole l'enceinte n° 2 du milieu ambiant. La pièce n° 8 est en cuivre percé de trous. La partie n° 7 contient du charbon actif. La partie intérieure du tube externe et la partie extérieure du tube interne sont polies mécaniquement afin de limiter les pertes par radiation. De plus la partie extérieure du tube interne est recouverte d'une feuille d'aluminium d'1/100 mm d'épaisseur tenue en place par du scotch transfert jusqu'à 290 mm du haut du dewar.

b) L'enceinte n° 2 : Réservoir d'azote liquide

L'enceinte n° 2 est destinée à recevoir l'azote liquide, ce qui porte la température de cette partie à 77 K. Elle est constituée de 2 tubes de dimensions respectives 290 x 292,4 - 177 x 180 sauf en partie supérieure où elle recevra l'enceinte n° 3. La paroi extérieure du tube interne est recouverte d'une feuille d'aluminium tenue en place par du scotch transfert. Dans cette enceinte se trouve une virole [6] en aluminium très pur (AG 9) constituée d'un tube Ø 282 x 286 destinée à uniformiser la température. Un dispositif de siphonnage pour retirer l'azote liquide en fin de manipulation est prévu : l'enceinte n° 2 est isolée de l'atmosphère par une bride supérieure qui porte les évents d'échappement des vapeurs. La contenance en azote de l'enceinte n° 2 est d'environ 50 litres.

c) Le vase dewar n° 3 : vide d'isolement azote hélium

Il est formé par deux tubes de diamètres respectifs 177x180 140x141.

La pièce n° 5 est un écran en aluminium à 99,99%. Cette pièce arrive à 290 mm du sommet du dewar. Cette longueur est choisie de manière telle que l'écran refroidi par les vapeurs froides de l'hélium prenne une température intermédiaire entre l'azote et l'hélium. La paroi extérieure du tube interne est elle aussi revêtue d'une feuille d'aluminium afin de diminuer les pertes par rayonnement. Dans cette enceinte règne un vide peu poussé sous atmosphère d'azote. Le gaz résiduel sert au prérefroidissement, jusqu'à la température de l'azote liquide. Il gèle ensuite lors du transfert d'hélium. Le vide atteint par cryopompage est très poussé.

d) L'enceinte n° 4 : réservoir d'hélium liquide

Dans cette enceinte vient se loger le réfrigérateur lui-même, tel qu'on peut le voir sur le schéma n° 9. Tout cet ensemble vient s'emboîter au creux de cette partie n° 4. C'est elle qui est destinée à recevoir l'hélium 4, à 4,2 K. La contenance de cette enceinte est d'environ 10 litres.

e) Assemblage des enceintes

En marche normale de l'appareil, l'ensemble représenté sur le schéma n° 9 est emboîté dans les Dewars. Les deux dewars 1 et 3 sont rendus solidaires l'un de l'autre et sont manipulés ensembles lors du montage et du démontage de l'appareil; leur manipulation est facilitée par un système de contrepoids. Quand l'appareil est ouvert, les dewars sont escamotés (et débouchent dans le vide sanitaire) par une trappe pratiquée dans le sol du laboratoire; trois boulons suffisent pour maintenir l'ensemble en position fermée.

Il n'y a aucun pompage auxiliaire ou injection de gaz d'échange à effectuer lors de la mise en batterie des dewars. L'azote est isolé du milieu extérieur par le bon vide de l'enceinte n° 1. Le gaz résiduel est en effet pompé par le charbon actif qui se trouve dans la partie n° 7, charbon qui est refroidi par l'azote contenu dans 2. Ceci a pour effet de faire baisser la pression de l'azote situé en 3 jusqu'à une valeur telle que la transmission de chaleur entre 4 et 2 est négligeable. En prérefroidissement, la transmission du froid jusqu'à l'enceinte 4 se fait par l'intermédiaire de l'azote sous faible pression dans l'enceinte n° 3. Lorsque l'ensemble est à la température de l'azote liquide (77 K) on effectue le transfert de l'hélium liquide dans l'enceinte n° 4.

2.22. PERFORMANCES DES DEWARS

Nous allons effectuer un calcul approximatif des différentes pertes du dewar en fonctionnement normal des appareils de manière à fixer les contributions des différentes causes de déperdition de froid. Nous comparerons ensuite les valeurs calculées aux valeurs mesurées.

a) Pertes du dewar à azote

- perte par conduction

La surface de transmission est pour l'acier inoxydable constituée par le tube Ø 290 x 292,4. La surface de conduction ($S = \pi d \times e$, d diamètre moyen du tube -e épaisseur) est donc de 1100 mm^2. Le flux chaleur exprimé en watts est $Q = \Delta K \frac{S}{L}$ (S étant la surface de transmission- L la longueur entre le niveau du liquide et la partie à la température ambiante).

$$\Delta K = \int_{77\ K}^{300\ K} K_t \, dT$$ (K_t étant la conductibilité thermique de l'acier inoxydable) (2)

$\Delta K = 27,5$ W/cm

En considérant que le niveau du liquide est à 15 cm en dessous du sommet du récipient (L = 15 cm), le flux transporté donc la perte par transmission est de

$$Q = 27,5 \times \frac{11}{15} = 22 \text{ W}$$

Mais l'acier inoxydable est refroidi par les vapeurs de l'azote qui bout dans le dewar. Il en résulte une diminution considérable des pertes par conduction. Une règle pratique simple consiste à prendre le dixième de cette valeur, soit 2,2 W(le facteur maximal de réduction théorique est 1/2).

- perte par rayonnement (3)

Ces pertes sont de l'ordre de $Q = \frac{\sigma A}{\frac{2}{\varepsilon} - I} (T_2^4 - T_1^4)$

- ε est l'émissivité des surfaces de l'ordre de 0,1
- A est la surface de rayonnement
- $\sigma = 5,7 \times 10^{-12}$ W/cm^2
- T_1 et T_2 sont les températures des deux milieux.

Dans le cas envisagé, la surface de rayonnement est la surface d'un cylindre d'environ 300 mm de diamètre et de hauteur 1390 mm ce qui donne A = 13 900 cm^2. La perte par rayonnement est donc de

$$Q = 5,7 \times 10^{-12} \times \frac{13\,900}{19} (300^4 - 77^4) \simeq 33,6 \text{ W}$$

La perte totale sur le dewar à azote est donc essentiellement due au transfert par rayonnement, sa valeur est de l'ordre de 36 watts. La chaleur latente de vaporisation de l'azote étant 198 J/g, la consommation est de l'ordre de 0,182 g/s soit 655 g/H ou encore 810 cm^3/H.

La consommation effective en azote relevée à l'aide d'un compteur à gaz est 930 cm^3/H, ce qui correspond approximativement à la valeur calculée. La contenance en azote étant d'environ 50 l, l'autonomie du dewar est supérieure à 2 jours.

b) Pertes du dewar à hélium

- Perte par conduction

Ces pertes s'effectuent par l'intermédiaire des tubes Ø 140 x 141 du schéma n° 8 et des tubes 1 (Ø 34) 2 (Ø 110) 3 (Ø 20) du schéma n° 9. La surface totale de conduction par l'acier inoxydable est de 478 mm^2 environ. La conductivité intégrale $\mathcal{K}$ de l'acier inoxydable entre 4,2 K et 77 K (azote liquide) est de 3,10 W/cm^2 (2) .

$$K = \int_{4,2}^{77} K \, dT = 3,10 \text{ W/cm}^2$$

Nous supposerons qu'au-dessus de l'écran 5 (schéma 7) la température est de 77 K. Le niveau maximal de l'hélium est à 300 mm au-dessous de cet écran (machine en marche normale). La formule ci-dessus conduit à des pertes de

$$Q = 3,1 \frac{4,78}{30} \simeq 0,5 \text{ W}$$

Du fait que l'acier est refroidi par les vapeurs d'hélium froid cette perte peut être divisée environ par 10, soit 50 mW.

En plus de cette section d'acier inoxydable il existe également deux tresses de cuivre qui alimentent une bobine supraconductrice. Ce sont des fils de 3/10 mm de diamètre.

Pour le cuivre :

$$K = \int_{4,2}^{77} K\,dT = 586 \text{ W/cm}$$

La perte due à ces fils sera donc $Q = 586 \times \frac{10^{-2}}{30} = 196$ mW . Ces tresses étant refroidies par les vapeurs froides de l'hélium, nous prendrons une perte de 20 mW ce qui nous fait une perte totale de 70 mW par conduction.

- Perte par rayonnement (3)

La surface de séparation entre l'hélium et l'écran est de l'ordre de 4 400 cm^2. Nous estimons que l'écran est à une température de 40 K

$$Q = 5,7 \times 10^{-12} \times \frac{4\,400}{19} (40^4 - 4,2^4) \simeq 3,5 \text{ mW}$$

Les pertes par rayonnement sur les flancs sont rendues négligeables par la présence de l'écran. La perte totale sur le dewar à hélium est donc dominée par la conduction et serait de 74 mW environ. La chaleur latente de vaporisation de l'hélium étant de l'ordre de 20,9 J/g ceci nous donne une consommation de 102 cm^3/H.

La consommation relevée à l'aide d'un compteur à gaz est de 150 cm^3/H avec azote et de 250 cm^3/H le dewar étant froid si l'on vide l'enceinte 2 de son azote. Le dewar nu (sans descentes de fils électriques) a une consommation de 110 cm^3/H. Ces chiffres sont supérieurs à la perte calculée, la différence pouvant être due aux pertes par rayonnement par le col.

2.23. LES PARTIES AUXILIAIRES

a) Le bon vide (schéma n° 10)

Le bon vide se situe tout autour de la partie froide de l'appareil. Il sert à isoler thermiquement cette partie froide du dewar contenant l'hélium-4 à 4,2 K.

C'est une enceinte en acier inoxydable (schéma n° 9 pièce7) raccordée à la ligne de pompage du mélange. L'étanchéité vis à vis de l'hélium 4 à 4,2 K est assurée à l'aide d'un joint d'indium figuré sur le schéma n° 11. Ce joint d'un diamètre de corde de 1 mm est écrasé et maintenu en place à l'aide de 2 demi-coquilles en duralumin; des vis solidaires des demi-coquilles bloquent les brides l'une contre l'autre à la manière d'un serre-joint. Cette disposition donne un gain sur l'encombrement en diamètre et diminue les temps de montage et démontage.

Le pompage s'effectue au travers d'un tube en acier inoxydable. Ce tube se poursuit à l'extérieur des enceintes par un tube en acier de 20 x 22. Le pompage est assuré par une pompe Alcatel 2002 à deux étages dont le débit à 1 Torr est de 2,5 m^3/H (pression limite 10^{-4} Torr) couplée à une pompe secondaire Edwards à diffusion (type E01) refroidie par eau et dont le débit est de 10 l/sec. Cette pompe fonctionne avec de l'huile Apiezon C (10 cm^3) qui permet d'atteindre un vide poussé. Une vanne papillon surmonte cette pompe. Cette vanne doit être fermée lors de la mise sous tension de la pompe pour éviter que l'huile chaude ne se vaporise vers le bon vide.

Un système de vannes permet de brancher ce circuit sur le détecteur de fuite afin de suivre en cours d'expérience la qualité du vide. De plus deux jauges de pression placées sur la tuyauterie extérieure permettent de suivre l'évolution de la pression. L'une est une jauge Médiovac 5 calibrée de la pression atmosphèrique à 10^{-4}Torr ; l'autre est une jauge NRC à cathode froide calibrée de 10^{-3} à 10^{-9} Torr. Lors d'un parfait fonctionnement du réfrigérateur la pression dans le bon vide est estimée à 10^{-10} Torr. La jauge NRC permet aussi de relever toute fuite éventuelle en cours d'expérience. Néanmoins, ses indications dépendent du niveau d'hélium dans le dewar et de la manière dont elle a été dégazée. Le détecteur de fuites permet lui aussi de contrôler la qualité du bon vide.

Un autre système de vannes permet de remplir le bon vide d'hélium 4 gazeux à partir d'une réserve ceci afin de prérefroidir à 4,2 K l'ensemble lors du démarrage de l'appareil.

b) Le pompage du pot à 1 K (schéma n° 12)

Comme nous le verrons au paragraphe 2.31 la ligne de pompage est un tube de 14 x 15 en acier inoxydable Z2 CND 17-12, puis un tube Ø 35x36, enfin un tube extérieur en laiton 60x62 qui relie la ligne interne à la pompe Edwards 1SC 450, de débit 450 l/mn. Une jauge Médiovac 5 permet de lire la pression du gaz à la température ambiante . La pompe 1SC 450 rejette l'hélium 4 pompé dans la récupération générale du bâtiment. Une sortie à l'air libre permet de purger le circuit avant l'introduction de l'hélium.

c) Le circuit du mélange (schéma n° 13)

- Caractéristiques générales

La ligne de pompage du mélange (schéma n° 9 pièce 2) sort verticalement des enceintes par un tube de diamètre intérieur de 150 mm. C'est le tube représenté sur le schéma n° 12. La ligne débouche ensuite dans un soufflet compensé. Le mélange est pompé à l'aide d'une pompe secondaire "booster" ODP 800 de Leybold Hereaus suivie d'une pompe primaire étanche Alcatel 2008 H. Cette pompe refoule le mélange vers le pot à 1K. Un système complexe de vannes permet de régler toutes les opérations pour le fonctionnement du réfrigérateur. Nous étudierons donc ce système dans un paragraphe ultérieur, traitant du démarrage de l'appareil, ce qui rendra beaucoup plus compréhensible le schéma n° 12 ainsi que son principe. Un manomètre ainsi qu'une jauge Médiovac 51 (avec sécurité) mesure la pression à l'aspiration de la pompe ODP800. Une jauge Mediovac 5 relève la pression au refoulement de cette même pompe donc à l'aspiration de la pompe Alcatel.

- Caractéristiques des pompes

La pompe Alcatel 2008 H est une pompe primaire à deux étages dont le débit à 1 mm de Hg est de 8,5 m^3/H et la pression limite de 10^{-4} Torr.

La pompe ODP 800 est une pompe de type "booster" à haute pression d'amorçage. Elle est surmontée d'une vanne tiroir Leybold. Cette vanne est nécessaire car lors du chauffage de la pompe, avant que celle-ci ne s'amorçe, l'huile se met à bouillir d'une manière désordonnée et vient se déposer dans les parties froides du réfrigérateur. Il est indispensable de fermer cette vanne au démarrage de la pompe.

D'après le constructeur, le débit nominal de l'ODP 800 est de 110 L/mm à 1 Torr. Des mesures ont été effectuées pour déterminer le débit maximal en hélium, le "booster" ODP 800 étant accouplé à une pompe à palettes de 8,5 m^3/H. Ce débit maximal a une valeur de 192 µmole/sec. Il ne croît que de 25% lorsque le déplacement volumétrique de la pompe primaire est porté à 25 m^3/H. Une courbe établie à la suite des mesures effectuées permet de connaître le débit molaire de la pompe 2008 H en fonction de la pression au refoulement (schéma n° 14)

- Sécurités

Les deux pompes du circuit sont montées avec des sécurités. La jauge médiovac 51 est une jauge possédant des relais permettant de couper un

appareil lorsque la pression lue est soit trop haute soit trop basse. La jauge étant placée en avant de la pompe ODP 800 commande cette pompe et joue en sécurité pour une montée de pression supérieure à 1,5 Torr. De plus la pompe étant refroidie par eau, un bilame coupe l'alimentation électrique de la pompe si la température devient trop importante (manque d'eau) Nous avons donc réalisé un système avec relais permettant la coupure automatique de la pompe dans les 2 cas. Ce système de sécurité est représenté sur le schéma n° 15. C'est un circuit pratiquement séquentiel. Si l'une des 2 sécurités se déclenche la pompe s'arrête et il est nécessaire de la réenclencher manuellement pour qu'elle redémarre, ce qui n'est possible que si les sécurités sont revenues en position normale.

Au refoulement de la pompe primaire nous avons installé un petit soufflet souple dont la dilatation déclenche un interrupteur électrique. Cet interrupteur alimente la bobine d'un relais temporisé à 60 sec. La pression monte au refoulement, la pompe s'arrête. Donc la pression baisse aussitôt. La pompe redémarre 60 sec après, ce qui évite des à coups démarrage-arrêt pratiquement instantanés. Un voyant et un interrupteur permettent de contrôler l'alimentation du relais.

- Piège à azote

Au cours du cycle, le mélange est constamment nettoyé par son passage au refoulement dans un piège à azote (schéma n° 16). Ce piège est constitué de 2 tubes coaxiaux en acier inoxydable, l'un de diamètre intérieur 60 mm, l'autre de diamètre extérieur 13 mm. La hauteur intérieure du piège est de 137 mm. Ceci correspond à un volume intérieur de 250 cm^3. Ce piège contient 170 cm^3 de zéolithe "Vascosorb". Il plonge dans un dewar en verre contenant 6 litres d'azote liquide ce qui donne une autonomie bien supérieure à 24 heures.

d) Les appareils de mesure

Outre les jauges de pression et les manomètres déjà signalés, un certain nombre d'appareils permettent de contrôler la bonne marche du réfrigérateur. Je vais maintenant brièvement décrire ces appareils.

- Mesure du niveau d'hélium 4 liquide

Ce niveau est relevé à l'aide de résistances au carbone aggloméré placées à niveaux connus dans le dewar, dont on mesure la résistance par un pont de wheastone de faible puissance (schéma n° 17). Plutôt que d'effectuer

une lecture directe de la résistance, on règle ce pont de telle façon que la valeur atteinte par la résistance quand elle baigne dans du liquide à 4,2 K corresponde à un courant nul au galvanomètre (équilibre du pont). Ce réglage étant effectué, on peut alors relever la valeur du courant pour la température de 77 K que l'on indique sur le galvanomètre. Par simple lecture on peut donc savoir d'une part, si la résistance trempe dans l'hélium liquide ou pas, d'autre part avoir une indication du profil de température dans le dewar.

- Mesure de la concentration du mélange

L'appareil utilisé est un spectromètre de masse identique à celui du détecteur de fuite, mais permettant de mesurer les pressions partielles de gaz de masse 3 et de masse 4. Au refoulement de la pompe primaire du circuit He^3, He^4, un dispositif permet d'alimenter ce détecteur (schéma n° 18). En effet l'hélium diffuse lentement à travers le téflon. Le taux de diffusion de l'hélium à travers le téflon à 300 K est de l'ordre de 7×10^{-9} cm^3 NTP/cm^2 sec pour une épaisseur de 1 cm pour 1 T de différence de pression (4) . Ceci permet d'avoir des pressions partielles suffisamment faibles pour être mesurables par la cellule spectrométrique .

Le rapport entre les pressions He^3 et He^4 nous permet de connaître le rapport entre les 2 composants dans la partie concentrée de l'appareil. Le bon fonctioneement du distillateur peut être contrôlé grâce à cette mesure.

Le spectromètre est calibré à l'aide de mélanges étalons. La sensibilité relative masse trois/masse quatre est voisine de 1,2 mais elle varie avec l'état de propreté de la membrane en téflon. Cette variation laisse penser que des phénomènes physico-chimiques complexes se produisent au sein de cette membrane ou à sa surface.

- Mesure des températures

Les températures au sein de l'appareil sont mesurées, en fonctionnement courant, par la variation des valeurs de résistances étalonnées. Un certain nombre de ces résistances sont placées aux points choisis de la partie froide. Elles sont mesurées à l'aide d'un pont différentiel alternatif fonctionnant à très basses fréquence (20 Hz) et dissipant dans la résistance mesurée une puissance extrêmement faible (de l'ordre de 10^{-14}W). Ces ponts de mesure ont été mis au point par P. Piéjus et E.J.A. Varoquaux (5)

2.3. LA PARTIE FROIDE

2.31. LE POT A 1 K

a) Description du pot

Ce pot à 1 K est appelé ainsi car sa température de fonctionnement est de l'ordre de 1 K correspondant à une pression d'hélium 4 de quelques Torrs. Son but est de permettre la condensation du mélange He^3- He^4 qui circule vers la partie froide de l'appareil.

Le pot est représenté sur le schéma n° 9 pièce 4. C'est un cylindre en acier inoxydable Z2 CND17-12 de diamètre 35x36 et de hauteur 50 mm.La pompe qui provoque l'ébullition de l'hélium 4 à 1 K est une pompe Edwards ISC 450 dont le débit est de 450 l/mn.

La ligne de pompage de ce pot est un tube de diamètre 14x15 en acier inoxydable Z2CND 17-12 dans la partie froide. A plus haute température, cette ligne s'élargit en un tube Ø 35 x 36 pour diminuer la perte en charge car, le débit volumétrique de l'hélium vapeur augmente ainsi que sa viscosité. La pression de cette vapeur est mesurée à l'ambiante, à l'aide d'une jauge Médiovac V. Afin de limiter les pertes par rayonnement dans la ligne de pompage on a placé une série d'ailettes en cuivre. Ces ailettes sont placées en quinconce de façon à laisser passer les vapeurs d'hélium, mais avec un recouvrement de façon que le pot à 1 K ne reçoive aucun rayonnement direct de l'atmosphère ambiante.

b) Alimentation du pot à 1K

Nous avons essayé divers systèmes permettant l'alimentation du pot à 1K en He^4.

Le premier système utilisé (6) consiste à l'alimenter à l'aide d'une bouteille d'hélium comprimé. L'hélium est prérefroidi à 4,2K à l'aide d'un échangeur adéquat. Le seul inconvénient de ce système est le fait que l'on peut tomber en panne de gaz en milieu de manipulation; c'est pour cette raison qu'il a été abandonné.

La solution qui a été utilisée au départ pour ces expériences était un système très voisin du précédent mais il avait l'avantage d'être continu. Du fait que les vapeurs de l'hélium contenues dans le dewar 4 schéma n° 8

sont récupérées, nous en avons pris une partie qui est injectée dans le pot à 1K, à l'aide d'un petit compresseur à membrane. Le gaz est purifié à l'aide d'un piège à azote, puis comprimé, est envoyé au travers d'un échangeur. Le gaz étant sous pression à la sortie de cet échangeur à 4,2K, il se liquéfie. Un système de by-pass muni d'une vanne pointeau entre l'aspiration et le refoulement du compresseur permet de régler la pression d'injection, donc le débit.

Ce système présente donc deux avantages vis à vis du précédent. Il est continu puisque il y a toujours de l'hélium dans le dewar et l'on peut régler le débit d'hélium.

Ces deux systèmes ont par contre un inconvénient. Ils sont complexes. En effet ils nécessitent un échangeur entre l'hélium et la vapeur. Il arrive que la vapeur entraînant des poussières et des gaz solidifiés, les petits tubes qui permettent son injection se bouchent. Ils ont par contre l'avantage que la circulation peut être coupée momentanément ce qui permet d'atteindre des températures plus basses (inférieures à 1K). Des montages de ce type, issus de nos expériences, ont été adoptés par M. Sudraud au Laboratoire et D. Le Fur, au Laboratoire de Physique du Solide à Orsay.

Le dernier système essayé a été plus simple, donc plus sûr. Le pot à 1 K est alimenté directement par l'hélium liquide contenu dans le dewar 4 schéma n° 8. Cette dernière disposition qui est la plus adaptée au problème des réfrigérateurs à dissolution a également été adoptée par Delong, Symko et Wheatley (7) .

c) Fonctionnement du pot à 1K

Le pot à 1 K est donc alimenté par l'hélium 4 liquide du dewar 4 (schéma n° 8). Sur le schéma n° 9 nous voyons que l'hélium circule dans un tube capillaire 8, passe à travers une fuite en alumine 9 où il subit une détente et arrive dans l'hélium liquide contenu dans le pot. Le fait d'abaisser la pression au-dessus de ce liquide abaisse la température de celui-ci. La fuite est constituée d'un petit tube capillaire contenant de la poudre d'alumine retenue par deux tampons de fibre de verre (8) . L'impédance de la fuite est choisie de façon à assurer le débit d'hélium convenable. En fonctionnement normal la pression lue à la température ambiante sur la jauge Médiovac est de 3 à 5 Torr, ce qui correspond à une température de l'ordre de 1,5 K.

d) Performances du pot à 1 K

Ce pot est destiné à condenser les vapeurs de l'hélium-3 qui arrivent de l'extérieur. La puissance thermique nécessaire à cette condensation peut être calculée.

Au niveau de la jauge Mediovac, la pression est en moyenne de 3-5 Torr Le débit volumique est de 450 l/mn soit 7,5 l/s. On extrait donc par pompage 7,5 l/s de gaz à 300 K sous la pression de 3 Torr soit
$7{,}5 \times \frac{3}{760} = 0{,}03$ INTP/s = 30 cm^3 d'hélium-4. Le débit molaire est donc de 30/24 000 = $1{,}25 \times 10^{-3}$ moles/s.

La chaleur de vaporisation de l'hélium à 1,5 K est de 89,70 J/mole(9) La puissance à 1K est donc de $1{,}25 \times 89{,}70 \times 10^{-3}$ = 112 mW soit une consommation horaire d'hélium 4 de : $1{,}25 \times 10^{-3} \times 3600 \times 4$ = 16 g/h de liquide ou 16/0,125 = 128 cm^3/h.

Cette puissance est plus qu'adéquate pour assurer la condensation de l'hélium-3 et le refroidissement des tubes de pompage.

L'hélium-4 consommé par le pot se soustrait de la consommation totale du dewar. Le fonctionnement du pot à 1 K est indépendant du niveau d'hélium dans le vase principal tant que celui-ci reste au-dessus de l'orifice de réalimentation. La durée de fonctionnement est indéfinie moyennant le remplissage périodique du bain principal en hélium liquide.

2.32. LA PARTIE MELANGE

La partie mélange comprend, pour sa part, tous les circuits He^3 qui se trouvent dans l'enceinte 5 (schéma n° 9). Les parties He^3, se trouvant en dehors de cette enceinte sont constituées de tubes et d'échangeurs permettant le fonctionnement en continu de cette partie froide.

a) Description succinte du fonctionnement

Pour une description plus simple du fonctionnement, il suffit de supposer que l'appareil est à sa mise en route. Les dewars sont pleins d'azote et d'hélium-4. Le pot à 1K est en fonctionnement.

On envoie un mélange d'hélium-3 et d'hélium-4 par le tube capillaire 11 (schéma n° 9). Le mélange passe dans ce tube et arrive dans une sorte d'hélice 10 soudée à la ligne de pompage 1 de l'hélium-4. Le mélange est donc refroidi par les vapeurs d'hélium-4 qui remontent dans le tube 1,

jusqu'à une température inférieure à 4,2 K. Lorsqu'il arrive sur le fond du pot 4 il passe dans un échangeur en cuivre dont la surface est d'environ 14 cm^2 et le volume 0,07 cm^3. C'est dans cet échangeur de chaleur en contact avec l'hélium 4 bouillant sous pression réduite, qu'il se condense.

Le débit maximal ainsi condensé est de 100 μ mole/sec (valeur nominale envisagée pour le réfrigérateur). La température du pot à 1 K est de l'ordre de 1,5 K. Le mélange qui arrive ayant été refroidi par les vapeurs pompées est à la température de 3 K et la concentration en hélium 3 est de l'ordre de 90%.

b) Echangeur de condensation

La pression étant relativement faible, le mélange gazeux qui arrive dans l'échangeur suit à peu de chose près la loi des gaz parfaits. La quantité de chaleur nécessaire pour le refroidir de 3 K à 1,5 K est alors:

$$- Q_1^\circ = \frac{5}{2} R(T_2-T_1)\, n = \frac{5}{2} \times 8{,}32 \times 10^7 \times (3-1{,}5) \times 100\times10^{-6} =$$

31200 erg/s

La quantité de chaleur nécessaire pour le condenser est :

$$- Q_2 = n_{He_3} \times L_{He_3} + n_{He_4} \times L_{He_4}$$

où L_{He_3} et L_{He_4} sont respectivement les chaleurs latentes de condensation de l'hélium 3 à 1,5 K (10) et de l'hélium 4 à 1,5 K (10) n_{He_3} et n_{He_4} étant les débits.

$$- Q_2^\circ = 90 \times 10^{-6} \times 48{,}9 \times 10^7 + 10\times10^{-6} \times 89{,}6 \times 10^7 = 53\,000 \text{ erg/s}$$

La quantité de chaleur totale à échanger par unité de temps est : $Q_1^\circ + Q_2^\circ = 84\,200$ erg/s . En appliquant la formule de la résistance de Kapitza (différence de températures faible) qui s'écrit : $Q^\circ = \alpha S 4T^3 \Delta T$ α étant le coefficient de Kapitza du cuivre dans le cas considéré, S la surface de l'échangeur, T la température de ce même échangeur, nous obtenons :

$$- Q^\circ = 2 \times 10^4 \times 14 \times 4 \times (1{,}5)^3 \times \Delta T$$

$$- \text{d'où } \Delta T = 224 \times 10^{-4} = 0{,}022°K$$

De plus l'échangeur respecte les règles classiques des échangeurs de chaleur. En effet pour un fonctionnement normal il faut que $\frac{l}{d} \times \frac{1}{Pt \times Re}$ (11) soit supérieure à 1. (l longueur, d diamètre, P_t nombre de Prandtl, R_e nombre de Reynolds). Or ici ce facteur est de 3360. La longueur

d'échange est donc plus que suffisante. Seule la résistance de Kapitza joue un rôle. Le fonctionnement de l'échangeur peut donc être considéré comme parfaitement satisfaisant.

Le mélange passe ensuite au travers du bouilleur 6 puis pénètre dans une série d'échangeurs de chaleur qui le conduisent à la chambre de mélange. Le changement de la phase concentrée à la phase diluée prend place dans cette chambre de mélange. L'hélium 3 remonte ensuite au travers des échangeurs et débouche dans le bouilleur 6 ou il se vaporise. Le gaz repart alors par la ligne de pompage 2. Dans le tube d'amenée 11 , nous avons du gaz puis en dessous du pot 4 du liquide, ceci jusqu'au bouilleur, puis de nouveau du gaz dans la ligne de pompage 2. Nous pompons alors sur la ligne 2 et réinjectons le mélange par le tube 11 , ce qui boucle le circuit fermé dans lequel s'effectue la circulation du gaz.

c) Les différents éléments de la partie mélange (schéma n° 19)

La partie mélange se décompose en quatre éléments principaux :
- le distillateur 3 - 2
- une série d'échangeurs 4 - 5 - 8 - 9
- une chambre de mélange 10
- divers supports 1 - 6 - 7 - 11
- des tubes de liaisons

Je vais décrire ces éléments dans cet ordre.

- Le distillateur

Il est constitué de 2 parties distinctes : deux demi-boîtes en cuivre s'emboîtant l'une dans l'autre et d'une ligne de pompage. Les deux demi-boîtes sont soudées l'une à l'autre à l'aide de la soudure Indalloy. Le diamètre de l'ensemble est de 32 mm. C'est dans cette enceinte que s'effectue la distillation. La température du liquide dans cette chambre est de l'ordre de 600 m K.

La ligne de pompage sur le distillateur est un tube en acier inoxydable de diamètre 13 x 15 mm soudé sur la bride 1, laquelle bride est raccordée sur la ligne de pompage du mélange. Afin de limiter les pertes par conduction entre cette bride relativement chaude et le distillateur qui lui doit rester froid afin d'assurer un bon taux de fractionnement, la section d'acier est réduite au diamètre 13x14 mm sur une longueur de 5 mm. Ce tube est fermé en bas par un couvercle en laiton brasé sur l'acier

inoxydable et l'aspiration se fait par un petit tube de diamètre 2x3 mm placé latéralement et débouchant au-dessus du fond en laiton. Cette constriction est rendue nécessaire par la présence de superfluide dans le distillateur.

- le problème du film superfluide

Le bon fonctionnement du distillateur, c'est-à-dire l'obtention d'une vapeur très concentrée en hélium 3, est perturbé par la présence d'un film superfluide. Les premières investigations de ce phénomène datent de 1939 (12) . Ces expériences ainsi que d'autres qui ont suivi ont été passées en revue par L.C. Jackson et L.G. Grimes (13) et par K.R. Atkins (14). Elles montrent que seule voyage avec une vitesse appréciable la composante superfluide de l'hélium constituée d'hélium-4 pur. Lorsque ce film voit une paroi chaude, il se vaporise et est aspiré par la pompe. Ce phénomène gêne la distillation, car il abaisse la concentration en hélium 3 dans le gaz pompé. La réduction de diamètre placée sur le trajet du film a pour objet de réduire la quantité d'hélium-4 remontant sous forme liquide vers les parties chaudes. Cette quantité dépend du taux de transfert du film.

Ce taux de transfert σ , exprimé en cm^3/s et par unité de périmètre est donné par la formule :

$$\sigma = \frac{\rho_s}{\rho} v_s e$$

où $\frac{\rho_s}{\rho}$ est le rapport de la densité du superfluide à la densité totale, e est l'épaisseur du film qui vaut quelques centaines d'Angströms et v_s est la vitesse du superfluide.

Le taux de transfert global dû au passage du film au travers d'un conduit est limité par le plus petit périmètre rencontré par le film se déplaçant vers le haut. Ceci est interprété comme une indication du fait qu'à une constriction, le superfluide se meut à sa vitesse critique lorsqu'il monte. Lorsqu'il se déplace vers le bas l'épaisseur du film peut croître au point que des gouttelettes de liquide peuvent se former. Une constriction placée sur un chemin de descente ne limite pas le taux de transfert du film.

L'influence néfaste du film superfluide sur le taux de rectification du distillateur est en général contrebattue en plaçant une constriction dans la ligne de pompage. D'autres dispositifs anti-film ont toutefois été essayés avec succès (15).

Analysons les différents facteurs qui affectent le taux de passage du film à travers une constriction d'après les études expérimemtales les plus récentes.

La plupart de ces études ont été effectuées sur de l'hélium 4 pur au dessus de 1,2 K : elles ne peuvent donner que des indications qualitatives sur l'écoulement d'un film superfluide à 0,6 K en présence d'hélium-3 Les quelques expériences qui ont été faites soit à plus basse température soit en présence d'hélium 3 seront passées en revue après celles sur l'hélium-4 pur qui sont plus nombreuses et dont les conclusions en sont les suivantes.

Le taux de transfert du film ne varie pas d'une manière bien marquée suivant la nature du substrat (verre-métaux). L'état de surface, qu'il s'agisse d'un poli très soigné ou d'une finition brute d'usinage, ne parait pas être un facteur déterminant sauf en ce qui concerne la définition du paramètre microscopique de passage (16) .

Par contre si des impuretés, provenant par exemple de gaz résiduels (air - vapeur d'eau) condensés, souillent la surface de la constriction, le taux de transfert est en général sensiblement augmenté (17) .

Il faut noter qu'à l'inverse un tapissage régulier des surfaces par des atomes de gaz rares comme le néon réduit le taux de transfert; ceci s'explique par le fait que les forces de Van der Waals entre l'hélium et ces gaz rares sont plus faibles et donnent une épaisseur de film réduite (18) .

Il a également été établi expérimentalement que le taux de transfert du film n'est pas affecté par des variations de température du substrat, dans la mesure où il n'y a pas d'évaporation forcée du film (19) .

L'épaisseur e du film dépend de la hauteur h par rapport à la surface libre du liquide (20) :

$$e \geq \frac{3 \times 10^{-6}}{h^{1/3}} \quad (cm)$$

Cette loi de dépendance, qui n'est valable que pour $h > 1cm$ conduit à des variations assez faibles avec la hauteur. Pour $h < 1cm$ le film peut être considérablement plus épais surtout en présence d'un flux thermique.

Ces taux de transfert sont de l'ordre de 8×10^{-5} à 12×10^{-5} cm^3/S cm vers 1,2 K en présence d'hélium 4 pur soit environ 3 à 4,5 μ mole/sec cm.

Des taux de transfert anormalement élevés, qui peuvent dépasser de 40% les valeurs précédentes ont été observés par C.C. Matheson et J. Tillay (21) , à côté de transferts normaux. Les taux de transfert anormalement élevés paraissent associés au mode de formation du film; ils sont observés lorsque les surfaces le long desquelles monte le film ont été mouillées par le liquide lui-même (par immersion) et non seulement par le film. Ces taux anormaux paraissent néanmoins décroître vers la valeur normale après un temps plus ou moins long.

Les taux de transfert les plus élevés mentionnés par Smith et Boorse (16) sont de 51 x 10^{-5} cm^3/sec cm soit 18,5 μ mole/sec cm pour du cuivre ayant subi une attaque à l'acide.

Les taux de transfert en présence d'hélium 4 pur s'accroissent au-dessous de 1 K et atteignent vers 0,6 K une valeur supérieure d'environ 30 à 50 % à celle qu'ils ont vers 1 K (22) . D'autre part, ces taux de transfert sont affectés par la présence d'hélium-3 et décroissent assez rapidement lorsque la concentration augmente (chute de 12% pour une concentration molaire en hélium-3 de 1% à 1,3 K) comme l'ont montré C.J.N. Van Den Meijdenberg, K.W. Taconis, C. Le Pair (23) .

En conclusion, les taux de transfert du film qu'on peut attendre dans le distillateur, pour des surfaces non contaminées, sont de l'ordre de 12 à 18x10^{-5} cm^3/sec cm soit 4,5 à 6,5 μ mole/sec cm.

Les valeurs observées sont les suivantes :

- diaphragme en acier inoxydable poli mécaniquement de diamètre intérieur 1,2 mm (24)

  n film = 2,8 μ mole He_4/s

- tube en cupro nickel de diamètre extérieur de 1,2 mm placé horizontalement dans un distillateur décrit par J. Wheatley (15)

  n film := 2,5 μ mole He_4/s

L'écoulement du film est limité par le diamètre intérieur du tube. Ce diamètre n'est pas spécifié dans l'article cité. Nous pouvons supposer une épaisseur de paroi de 1/10 mm ce qui conduit à un diamètre de 1 mm.

Ces deux expériences donnent respectivement les valeurs de 7,5 et 8 μ mole/sec cm soit 20,5 et 22 x 10^{-6} cm^3/sec-cm pour le taux de transfert. (le chiffre cité par J. Wheatley (15) inférieur d'un facteur 2,5 à ces valeurs paraît résulter d'une erreur numérique).

Ces valeurs correspondent aux valeurs maximales que j'ai déduite plus haut sur la base d'expériences faites en présence d'hélium 4 pur.

En conclusion, la valeur pratique du taux de transfert que j'adopterai par la suite est :

- $n = 7{,}5$ µ mole He_4/sec cm de périmètre

Le diamètre minimal de la constriction dépend de la perte en charge tolérable ainsi que d'autres facteurs comme la température de fonctionnement du distillateur. Ces questions seront examinées par la suite.

- Les échangeurs

Le mélange sort du pot à 1 K, puis il descend par un petit tube capillaire de diamètre 0,5 x 1 mm en acier inoxydable, au travers de la ligne de pompage du distillateur, traverse le fond de cette ligne et arrive à un échangeur 4. Cet échangeur est en cuivre massif (schéma n° 20); le jeu entre les plaques est de 0,1 mm et les gorges ont une profondeur de 1 mm. Sa surface totale de contact est de 28 cm^2. Il est plongé dans le liquide du distillateur à une température voisine de 550 m K.

Le mélange liquide qui y arrive et dont le débit est de 100 µ mole/s, est à une température de 1,5 K. La quantité de chaleur nécessaire pour refroidir ce liquide (90% He_3) est :

$$Q = n_3 \Delta H_3 + n_4 \Delta H_4$$

ΔH_3 et ΔH_4 étant les variations d'enthalpie du mélange

$$Q = 90\ 10^{-6} \times 3 \times 1{,}4 \times 10^7 + 10 \times 10^{-6} \times 4 \times 0{,}3 \times 10^7 = 4980 \text{ erg/s}$$

D'après la formule de la résistance de Kapitza :

$$Q = \alpha S 4 T^3 \Delta T = 2 \times 10^4 \times 28 \times 4 \times (0{,}55)^3 \times \Delta T$$

$$\Delta T = 134 \times 10^{-4} \text{ K} = 13 \text{ m K}$$

Le mélange concentré aborde ensuite l'échangeur 5 constitué de 2 tubes concentriques, le tube central contenant du liquide chaud qui descend et le tube extérieur contenant le liquide froid venant de la chambre de mélange (schéma n° 20). Cet échangeur a une longueur de 2 m.

Le liquide venant de l'échangeur 5 pénètre alors dans une série de deux échangeurs localisés 8 et 9 ayant la même structure mais de diamètres différents. Ces échangeurs sont issus des travaux de P. Roubeau, D. Lefur, et E. Varoquaux. Ils sont constitués de 2 plaques en acier inoxydable possédant des rainures les deux liquides (concentré et dilué) étant séparés par une feuille fine en cuivre. La séparation des 2 tubes

de l'échangeur 5 se fait suivant le schéma n° 20. L'échangeur 8 a un diamètre de 50 mm, l'échangeur 9 a un diamètre de 70 mm. Le principe de fabrication de ces échangeurs est simple. L'échangeur 8 est représenté sur le schéma n° 21. Les deux échangeurs sont absolument similaires. Nous étudierons leurs caractéristiques détaillées au chapitre fonctionnement pratique du réfrigérateur.

- La chambre de mélange

La première chambre de mélange montée pour les essais de l'appareil était une petite boîte en cuivre telle celle représentée au schéma n° 7. La seconde, de forme identique, est réalisée en Epibond 100 A.

- Les supports

La partie 1 du schéma n° 19 est une bride massive en acier inoxydable; elle est montée sur la ligne de pompage hélium 3; l'étanchéité étant assurée par un joint d'indium (schéma n° 11). La ligne de pompage du distillateur est brasée sur cette bride à l'aide de la brasure Indalloy. La bride permet par démontage du joint d'indium de séparer la partie la plus froide du reste de l'appareil, ce qui facilite les interventions sur celle-ci.

Une couronne en laiton vissée sur le distillateur maintient trois tubes à parois minces en acier inoxydable 6 (à cause de la faible conduction thermique de ce métal) sur lesquels sont brasés à l'aide de la Castolin 1802, le tube extérieur de l'échangeur réparti qui est enroulé en spirale. Une autre couronne en laiton 7 maintient les 3 supports en acier inoxydable et porte le premier échangeur localisé. De cette couronne partent 3 autres tubes en acier inoxydable entrecroisés par des plaques de laiton. Ces plaques supportent l'autre échangeur et la chambre de mélange. La partie 11 est une simple pièce en laiton destinée à diminuer les pertes par rayonnement sur la partie froide.

- Les tubes de liaison (schéma n° 19)

Le liquide venant du pot à 1 K descend par un tube en acier inoxydable de diamètre 0,5 x 1 mm, puis il pénètre dans l'échangeur 4 il en ressort par un tube de diamètre 0,6 x 0,8 mm obturé partiellement par un fil d'acier inoxydable de diamètre 0,5 mm.

Il pénètre alors dans l'échangeur 8 par un tube de diamètre 0,25 x 1mm en ressort par un tube identique et pénètre dans l'échangeur 9.

Il en ressort par un tube de diamètre 1x2mm. Ce tube assez court est raccordé à un tube de diamètre 0,25 x 1mm à l'aide d'une bride à joint d'indium (schéma n° 22). Le tube de 0,25 x 1mm descend à la chambre de mélange.

Le liquide ressort de cette chambre par un tube de diamètre 1x2mm coupé lui aussi par une petite bride avant l'échangeur 9. De là il remonte à l'échangeur 8 à l'aide d'un tube de diamètre 1x2mm puis dans l'échangeur réparti 4 (tube de diamètre 1x2mm obturé partiellement par le tube de 0,6 x 0,8 mm) et il débouche dans le distillateur.

d) Quantités d'hélium-3 et d'hélium-4 nécessaires

- détermination des volumes

Nous allons calculer la quantité d'hélium 3 nécessaire au bon fonctionnement de l'appareil. Pour celà il faut connaître les volumes réels des différentes parties du circuit mélange (tout au moins celles pour lesquelles le volume de mélange n'est pas négligeable). Nous négligeons la ligne de pompage en elle-même car la pression y est trop faible (10^{-3} Torr).

Pour ce qui est du volume des circuits auxiliaires il est difficile de le calculer car il faut tenir compte du piège qui est froid en marche normale. Nous en prendrons donc une détermination expérimentale effectuée à partir d'un volume annexe connu. Le volume V du circuit de pompage comprenant le piège refroidi à l'azote est de 1096 cm^3 effectifs, c'est-à-dire ramenés à la température normale. Le volume du manomètre v, déterminé séparément est de 72 cm^3. Le volume mort du refoulement de la pompe, X est de 405 cm^3.

Le tuyau d'amenée de l'hélium 3 concentré jusqu'à la température de 4,2 K est un tube de diamètre intérieur 0,5 mm et de longueur 2m. Son volume est donc 0,5 cm^3. La pression au refoulement étant de 120 Torr la quantité de gaz qu'il contient est $0,5 \times \frac{273}{4,2} \times \frac{120}{760} = 5$ cm^3. Nous admettrons que le rapport du volume du gaz dans les conditions normales de température et de pression à celui du liquide bouillant au point normal d'ébullition est de 450 pour l'hélium 3 et 750 pour l'hélium 4 (26) .

Le condenseur a un volume réel de 0,071 cm^3. Il contient donc $0,071 \times 450 = 32$ cm^3 d'hélium-3 gazeux. La fuite poreuse qui lui succède correspond à 14 cm^3 d'hélium-3 gazeux. L'échangeur situé dans le distillateur contient 64 cm^3 d'hélium-3, l'échangeur à contre courant en contient 8 cm^3 (pour le côté concentré), le petit échangeur localisé en contient 8 cm^3 et le gros 15 cm^3, les tubes de liaison 45 cm^3.

Evaluons maintenant les volumes pour le côté dilué du circuit. Les tubes sont à une température de l'ordre de 200 m K. Le pourcentage en He_3 serait alors de l'ordre de 4%. Leur volume réel étant de 0,25 cm^3 celà correspond à 10 cm^3 d'He_3 et 200 cm^3 de He_4.

Le petit échangeur a un volume réel de 0,054 cm^3, sa température est de l'ordre de 200 m K ce qui correspond à une concentration de l'ordre de 4%. Il contient donc 2 cm^3 de He_3 et 38 cm^3 de He_4. Le gros échangeur a un volume réel de 0,1 cm^3. Sa température est de l'ordre de 100m K. La concentration est de 6% et il contient donc 5 cm^3 de He_3 et 70 cm^3 de He_4.

L'échangeur réparti étant à 400 m K en moyenne, la concentration est de 2% et il contient 8 cm^3 de He_3 et 412 cm^3 de He^4.

Le distillateur est à 600 m K et la concentration y est de 1,5% Les chambres de mélange ont été de 2 modèles soit une chambre en cuivre de volume réel 5 cm^3, soit une chambre en Epibond 100 A de volume réel 2 cm^3. La chambre de mélange peut être soit pleine en He^3 (ceci indique alors le minimum de He^3 nécessaire pour un fonctionnement normal dans tous les cas) soit être pleine de mélange à 6,5% (ceci indique la quantité de He_4 nécessaire). Les quatre situations qui en résultent, petite et grande chambres pleines ou vides, sont analysées dans le tableau suivant.

- Quantités d'hélium-3 et d'hélium-4 dans le mélange

Dans un réservoir de 10 litres de volume, nous avons introduit de l'hélium 3 de façon qu'à 20°C la pression dans l'enceinte soit de 225 mm de Hg. La valeur introduite est donc de 3 l TPN soit 0,134 mole.

La quantité d'hélium-4 introduite est de 6,4 litres TPN. On a donc au total 9,4 litres répartis dans les 2 réserves ce qui correspond à une pression lue au manomètre de 380 mm de Hg.

- Conclusion

Nous voyons donc que la quantité d'hélium 3 est suffisante dans tous les cas. Il y a un léger surplus d'hélium-4 qui garantit que le distillateur est mouillé par le liquide même lorsque la pression gazeuse au refoulement est supérieure à la valeur de régime de 120 Torr Si nous utilisons la chambre de mélange en Epibond 100 A il y a 1500 cm^3 de He_3 en trop. Il faut donc en retirer sans celà la dissolution ne se fait plus au niveau de la chambre qui est pleine de He_3 concentré mais dans l'échangeur. Cette opération s'effectue lors de la mise en route.

Désignation de la partie envisagée	Volume réel cm^3	$V.He_3$ max. cm^3	$V.He_4$ min. cm^3	$V.He_3$ min. cm^3	$V.He_4$ max. cm^3
tuyauterie ambiante	1096	238		238	
tuyauterie descente	0,5	5		5	
condenseur (1 K)	0,071	32		32	
fuite	0,032	14		14	
distillateur concentré	0,14	64		64	
erpentin concentré	0,018	8		8	
petit échangeur concentré	0,018	8		8	
grand échangeur concentré	0,034	15		15	
tubes de liaison "	0,1	45		45	
chambre de mélange cuivre (pleine d'He_3)	5,5	2475			
chambre de mélange 6,5% (pleine dilué)	5,5			268	3857
tubes de liaison dilué 4%	0,25	10	200	10	200
grand échangeur dilué 6%	0,1	5	70	5	70
petit échangeur dilué 4%	0,054	2	38	2	38
serpentin dilué 2%	0,56	8	412	8	412
Total (chambre de 5,5 cm^3)		2929	720	722	4577
Chambre de mélange en Epibond	2	900	720		
	2			98	1402
Total (chambre de 2cm^3)		1446	720	552	2122

e) Calcul des pertes en charge des différents circuits

- Généralités

La détermination des sections de passage des différents circuits dépend des pertes en charge tolérables dans les différentes sections du circuit de circulation. Dans les lignes de pompage de la vapeur l'écoulement est gazeux et le calcul de la perte en charge, que je vais examiner en détail ci-après, s'effectue suivant les méthodes habituelles. Ces mêmes méthodes s'appliqueront au calcul de l'écoulement de l'hélium-3 dans la solution à condition de choisir le coefficient de viscosité approprié. La perte en charge dépend du régime d'écoulement. En régime laminaire cette perte en charge ΔP s'exprime en fonction de la viscosité du fluide η, du volume de fluide déplacé V par unité de temps dans les conditions de l'écoulement et d'un facteur géométrique Z appelé, improprement d'ailleurs, impédance d'écoulement.

$$- \Delta P = \eta Z V$$

- Régimes d'écoulement

Pour un gaz la nature du régime d'écoulement dépend de la valeur du libre parcours rapporté à une dimension caractéristique du circuit de pompage.

Le libre parcours moyen des molécules du gaz pompé est donné par la théorie cinétique des gaz (27)

$$\lambda = \left(\frac{\pi k}{2m}\right)^{1/2} T^{1/2} \frac{\eta}{P}$$

k étant la constante de Boltzmann, m la masse d'une molécule,
T la température absolue, η la viscosité, P la pression moyenne.

La valeur limite entre l'écoulement laminaire et le régime moléculaire est celle pour laquelle $\lambda = D$, D étant le diamètre de la ligne de pompage.

$$\left(\frac{\pi k}{2m}\right)^{1/2} T^{1/2} \frac{\eta}{P} = D \qquad \text{d'où} \quad P = \left(\frac{\pi k}{2m}\right)^{1/2} \frac{\eta}{D} T^{1/2}$$

La valeur du facteur constant $\left(\frac{\pi k}{2m}\right)^{1/2}$ est $\left(\frac{3,14 \times 1,38 \times 10^{-16}}{2 \times 3} \times 6 \times 10^{23}\right)^{1/2} =$

$6,58 \times 10^{3}$

étant donné que $m = \frac{M}{N_a}$ (M masse molaire, N_a nombre d'Avogadro).

Il vient donc que la pression de transition d'un régime à l'autre est :

$$P = 6{,}58 \times 10^{-3} \frac{\eta\,[\text{poise}]}{D\,[\text{cm}]}\, T^{1/2}\,[^\circ\text{K}] \qquad [\text{en barye}]$$

$$P = 4{,}595 \times 10^{-6} \frac{\eta\,[\text{poise}]}{D\,[\text{cm}]}\, T^{1/2}\,[^\circ\text{K}] \qquad [\text{en Torr}]$$

- Viscosité de l'hélium-3 gazeux

La viscosité de l'hélium 3 est mal connue expérimentalement mais peut être exprimée par la formule de Chapman - Enskog (28)

$$\eta\,(T) = 0{,}499\; p\; \vec{V}\; \lambda$$

p étant la masse volumique, $\vec{V}$ la vitesse molaire moyenne

$$\vec{V} = 2\left(\frac{2KT}{\pi m}\right)^{1/2} \quad \text{et} \quad \lambda \text{ est un libre parcours moyen}$$

Soit S_{Vc} la surface de collision pour la viscosité et la conductibilité thermique. Pour des sphères dures élastiques, on a la relation:

$$\lambda = \frac{1}{\sqrt{2}} \frac{1}{\frac{N}{V} S_{Vc}}$$

$\frac{N}{V}$ étant la densité numérique soit le nombre d'atomes/cm^3. On admet que S_{Vc} est la même pour les isotopes 3 et 4 de l'hélium car pour une température supérieure à 10 K les effets quantiques sont négligeables.

P et $\frac{N}{V}$ sont reliés par $p = m \frac{N}{V}$

d'où $$\eta = 0{,}499\; m \frac{N}{V} \times 2 \left(\frac{28T}{\pi m}\right)^{1/2} \times \frac{1}{\sqrt{2}} \frac{1}{\frac{N}{V} S_{vc}}$$

soit $$\eta = 0{,}499 \times 2 \times \left(\frac{mkT}{\pi}\right)^{1/2} \times \frac{1}{S_{Vc}}$$

donc entre He_3 et He_4 S_{Vc} étant le même, seul m change donc

$$\eta_{He_3} = \left(\frac{3}{4}\right)^{1/2} \eta_{He_4} = 0{,}866\; \eta_{He_4}$$

Comparons ce résultat obtenu par le calcul à celui des mesures de Bellser et Misenta (29) :

à 20 K $\eta_{He_4} = 34,89\ \mu p$ et $\eta_{He_3} = 30\ \mu p$

D'où $\frac{\eta_{He_3}}{\eta_{He_4}} = 0,860$ valeur qui n'est pas éloignée de la valeur théorique trouvée ci-dessus. En dessous de 10 K il y a des déviations par rapport à la théorie cinétique classique des gaz. Les calculs en ont été faits par De Boer et Cohen (30) . La viscosité étant déjà très faible, ces déviations seront négligées par la suite.

La dépendance en température de η (T) peut être prise de la forme

$$\eta = CT^{\alpha}$$

à 20 K $\eta_{He_4} = 34,89\ \mu p$ (31) à 288 K $\eta_{He_4} = 194,3\ \mu p$ (31)

ce qui conduit à

- $\eta = 5,07\ T^{0,64}\ \mu p$ pour l'hélium-4

et à - $\eta = 4,39\ T^{0,64}\ \mu p$ pour l'hélium-3

- Pertes en charge dans les deux régimes

Pour un tube circulaire en écoulement laminaire on utilise la formule de Poiseuille.

$$n = \frac{\pi}{128} \frac{D^4}{\eta} \frac{\pi}{RT} \frac{dP}{d\ell}$$

n débit molaire, R constante des gaz parfaits, $\frac{dP}{d\ell}$ perte en charge par unité de longueur.

En régime transitoire entre le laminaire et le moléculaire la formule utilisée est la suivante (32)

$$n = \frac{\pi}{128} \frac{D^4}{\eta} \frac{P}{RT} \left[1 + 8\left(\frac{\ell}{F} - 1\right)\frac{\lambda}{D} \right] \frac{dP}{d\ell}$$

F étant le facteur de glissement de Maxwell.

En utilisant l'expression du libre parcours moyen λ , il vient :

$$n = \frac{\pi}{128} \frac{D^4}{\eta} \frac{P}{RT} \left[1 + 8\left(\frac{\ell}{F} - 1\right)\left(\frac{\pi KT}{2m}\right)^{1/2} \frac{\eta}{PD} \right] \frac{dP}{d\ell}$$

d'où la forme suivante :

$$n = \left[\frac{\pi}{128} \frac{D^4}{\eta} \frac{P}{RT} + \left(\frac{\ell}{F} - 1\right)\left(\frac{\pi}{8}\right)^{3/2} \frac{D^3}{N_a (mkT)^{1/2}} \right] \frac{dP}{d\ell}$$

Cette formule pour le régime transitoire revient à ajouter $\frac{\pi}{128} \frac{D^4}{\eta} \frac{P}{RT} \frac{dP}{dx}$ du régime laminaire à l'autre terme qui correspond au régime moléculaire, dont la contribution est :

$$\left(\frac{2}{F} - 1\right) \frac{1}{(mk)^{1/2}} \left(\frac{\pi}{8}\right)^{3/2} \frac{D^3}{T^{1/2}} \frac{P_2 - P_1}{Na}$$

Le débit molaire correspondant s'exprime par conséquent sous la forme :

$$N = \left(\frac{2}{F} - 1\right) \frac{1}{(mk)^{1/2}} \left(\frac{\pi}{8}\right)^{3/2} \frac{D^3}{T^{1/2}} \frac{P_2 - P_1}{L}$$

Comparons ce résultat à celui de Dushman (27)

$$N = \frac{1}{3} \frac{\pi D^3}{L} \frac{1}{2} \frac{P_2 - P_1}{kT} \left(\frac{kT}{\pi m}\right)^{1/2} = \frac{1}{2} \frac{\pi^{3/2}}{2} \frac{1}{(mk)^{1/2}} \frac{D^3}{T^{1/2}} \frac{P_2 - P_1}{L}$$

on a $\left(\frac{\pi}{2}\right)^{1/2} \times \frac{1}{3} = 0{,}4175$

$$\left(\frac{\pi}{8}\right)^{3/2} \left(\frac{2}{F} - 1\right) = 0{,}247 \left(\frac{2}{F} - 1\right)$$

d'où $F \geq 0{,}75$

On retrouve donc la formule donnée par Dushman avec F = 0,75 ce qui correspond à des surfaces très régulières.

L'évaluation numérique des deux contributions laminaire L et moléculaire M et de la valeur totale N du débit molaire par unité de perte en charge a été effectuée à l'aide d'une calculatrice électronique, à trois températures 293 K, 77 K et 4,2 K pour des pressions moyennes allant de 1 à 3000 baryes et différents diamètres D.

- $L = \frac{\pi}{128} \frac{D^4}{\eta} \frac{P}{RT}$
- $M = \frac{\pi}{6} \frac{D^3}{(mkT)^{1/2}}$
- N = L + M

Le résultat de ce calcul est donné dans les tableaux n° 23 où P est en barye, D en centimètre, L, M, N en mole cm barye^{-1}

Avant d'effectuer l'application numérique aux tubes de pompage, je vais d'abord évaluer les pertes en charge dans la solution diluée, ce qui permettra de calculer la concentration en He dans le distillateur et de

déterminer, connaissant sa température, la tension de vapeur d'hélium-3 y régnant. Cette tension de vapeur détermine la pression amont dans la ligne de pompage. Les pertes en charge seront calculées à partir de la valeur de cette pression amont.

- Ecoulement de l'hélium-3 dans la solution

Voyons donc maintenant le cas de l'écoulement de l'hélium-3 en solution. Les solutions habituellement rencontrées en physico-chimie sont telles que le mouvement des atomes de soluté par rapport au solvant se fasse de manière purement diffusive. L'équilibre osmotique est souvent long à atteindre.

Les solutions He3-He4 superfluides se comportent différemment comme l'ont montré A.C. Ghozlan et E. Varoquaux (33): la propagation de la pression osmotique s'y effectue avec la vitesse du second son (≃ 20m/sec). Ce comportement se comprend parfaitement bien dans le modèle qui assimile l'hélium-3 en solution à un quasi-gaz. Le régime d'écoulement de la pression osmotique y est le même que celui de la pression réelle du quasi-gaz équivalent. En régime laminaire l'écoulement met en jeu des forces de viscosité qui engendrent une perte en charge de pression osmotique. C'est cette perte en charge qui se produit dans les circuits froids de la partie mélange et que je vais maintenant évaluer.

Mais auparavant il est nécessaire de sélectionner les valeurs adéquates pour la viscosité de l'hélium 3 en solution. Les premières mesures de ce paramètre pour des solutions diluées en dessous de 0,6 K ont été effectuées par R.W.H. Webeler et G. Allen (34) par observation de l'amortissement des vibrations d'un quartz.

D'autres mesures plus récentes effectuées à l'aide d'un viscosimètre à fil vibrant à l'Université de Manchester (35) en étudiant l'amortissement des modes de torsion d'un quartz à l'Université du Sussex (36), et par la méthode habituelle utilisant un capillaire à l'Université d'Etat de l'Ohio (37) ne sont en accord ni avec les premières mesures ni entre elles.

Ces désaccords paraissent dus aux différentes méthodes de mesure utilisées. Les valeurs choisies pour la suite du calcul sont celles relativement concordantes données par les méthodes du capillaire et du fil vibrant, méthodes qui mettent toutes deux en jeu des fréquences basses et des grands déplacements.

- Pertes en charge de la partie froide

Je vais d'abord donner les impédances des divers circuits. Ces impédances ont été calculées à l'aide des formules suivantes :

$Z = \frac{128}{\pi} \frac{L}{D^4}$ pour les tubes

$Z = 12 \times \frac{L}{\pi De^3}$ pour les espaces annulaires.

L'impédance des échangeurs a été mesurée. Les résultats sont indiqués dans le tableau suivant :

Côté concentré	Z cm^{-3}
tube dans le bouilleur (7cm de 0,5)	$4,5 \times 10^7$
échangeur réparti (2m de 0,5 x 0,6)	9×10^9
entrée petit échangeur (9cm de 0,25)	$9,4 \times 10^8$
petit échangeur (modèle 1)	$9,7 \times 10^8$
petit échangeur (modèle 2)	16×10^6
tube de liaison (10 cm de 0,25)	$10,4 \times 10^8$
gros échangeur (modèle 1)	$10,3 \times 10^8$
gros échangeur (modèle 2)	$3,2 \times 10^9$
sortie échangeur (1cm de 1)	4×10^5
vers chambre (15 cm de 0,25)	$15,6 \times 10^8$
chambre de mélange	$1,2 \times 10^8$
Côté dilué	
sortie chambre (20 cm de 1)	8×10^6
gros échangeur (modèle 1)	$51,7 \times 10^8$
gros échangeur (modèle 2)	$25,8 \times 10^7$
tube de liaison (15 cm de 1)	6×10^6
petit échangeur (modèle 1)	56×10^8
petit échangeur (modèle 2)	62×10^6
échangeur réparti (2 m de 0,8 x 1)	12×10^8

Seules les pertes en charge du côté dilué sont intéressantes. Nous allons donc les calculer à partir des valeurs des impédances ci-dessus. La pression osmotique dans la chambre de mélange est de 23 mb pour 30 mK (1). La viscosité du mélange est donnée dans la figure n° 24. (34, 35, 36 , 37).

Le volume molaire est donné par la formule : $V_M = V_{40} \frac{1+\alpha x}{x}$
x étant la concentration et $V_{40} = 27,5\ cm^3$ $\alpha = 0,28$.

Le débit volumique est donc :

$$U = n\ V_M = 80 \times 10^{-6} \times 27,5\ \frac{1+\alpha x}{x}$$

$$U = 22 \times 10^{-4}\ \frac{1+\alpha x}{x}\ \ cm^3/s$$

Les pertes en charges ainsi calculées sont les suivantes

	Z	μ poise	U 10^{-4} cm^3	P baryes
Sortie de la chambre : 60 mK	$8x10^6$	200	338	54
Gros échangeur : 100 mK				
modèle 1	$52x10^8$	55	367	10000
modèle 2	$56x10^7$	55	367	520
Tubes de liaison : 200 mK	$6x10^6$	30	550	10
Petit échangeur : 200 mK				
modèle 1	$56x10^8$	30	550	9240
modèle 2	$62x10^6$	30	550	100
Echangeur réparti : 400 mK	$12x10^8$	25	1100	3300
Perte en charge maxi				13464
Perte en charge mini				4504

La perte en charge varie donc entre 13,5 et 4,5 mb selon les modèles d'échangeurs adoptés.

La pression osmotique dans le distillateur est donc soit 9,5 mb soit 18,5 mb. C'est cette dernière valeur qui sera retenue pour la suite des calculs (la 1ère correspond à des échangeurs trop serrés).

- Perte en charge dans l'orifice du distillateur

Calculons maintenant la perte en charge dans le distillateur. Elle est en majeure partie due au dispositif anti-film.

La température mesurée du bouilleur est d'environ 550 mK. La concentration est donc $x = \frac{\pi V_{40}}{RT} = 1,14\%$. La pression du gaz est de 28 μ soit 37 baryes (1) . Pour une mole nous avons : $P = \frac{RxT}{V}$ d'où $V = 1,12 \times 10^6$.
La masse volumique du gaz est donc : $\rho = 3/1,12 \times 10^6 = 2,7x10^{-6}\ g/cm^3$.

La vitesse moyenne du gaz dans le Venturi constitué par l'orifice est $v = \frac{n\,V}{S}$ et pour n = 80 µmole/s on a v = $2{,}85 \times 10^3$ cm/s . La vitesse du son dans le gaz est donnée par la formule $u = \sqrt{\gamma \frac{P}{\rho}}$ et est de : $4{,}8 \times 10^3$cm/s. Elle est donc bien supérieure à celle du fluide. La perte en charge en écoulement subsonique dans l'orifice est :

$$\Delta P = \frac{1}{2} \rho V^2 + \Delta p$$

et $$\Delta p = \frac{128}{\pi} \frac{\eta L \dot{n} T}{D^4 P} \quad (\eta = 4 \text{ up}) \qquad P = 37 \text{ baries}$$

La perte en charge totale dans le distillateur est donc de 18,7 baryes. La pression du gaz à la sortie du distillateur est de 18,3 baryes.

- Pertes en charge dans les lignes de pompage

La pression à la sortie du dispositif anti-film est de 18,3 baryes comme nous venons de le calculer.

Le gaz remonte alors jusqu'à la bride à 4,2 K dans un tube de diamètre 13 mm et de longueur 3cm.

perte laminaire : $L = 54 \times 2{,}29 \times (1{,}3)^4 = 354$

perte moléculaire: $M = 9 \times (1{,}3)^3 = 20$

perte totale $N = 374$

La perte en charge est donc : $P = \frac{n \times L}{N} = 0{,}64$ baryes pour un débit de 80 µmoles par seconde. La pression tombe à 17,7 baryes .

Le gaz passe ensuite dans un tube de diamètre 60 mm et de longueur 50 cm à 77 K.

$L = 713 \times 2{,}2 = 1570$

$M = 468$

$N = 2038$

La perte en charge est de 1,96 baryes, la pression de 15,7 baryes.

Le gaz arrive enfin dans un tube de diamètre 110 mm, de longueur 65 cm à 293 K

$L = 861 \times 2 = 1722$

$M = 1479$

$N = 3201$

La perte en charge est de 1,6 baryes, la pression de 14 baryes.

La jauge Médiovac placée à l'aspiration devrait donc indiquer 14 baryes soit 10,5 x 10^{-3}Torr. La pression effectivement relevée sur la jauge est de 5 x 10^{-3}Torr. L'ordre de grandeur est respecté. Une partie de la différence provient du fait que nous n'avons pas tenu compte des coudes des conduites et des constrictions dues aux écrans de rayonnement. En conclusion, la perte en charge dans le gaz est acceptable . Dans la solution, elle est à la limite de ce qui est admissible; j'indiquerai au chapitre 3 l'influence de ce facteur sur le fonctionnement du réfrigérateur.

2.4. LE FONCTIONNEMENT PRATIQUE DU REFRIGERATEUR

Cette quatrième partie traite de la pratique du fonctionnement du réfrigérateur et se décompose en trois paragraphes.

Le premier concerne l'utilisation normale du réfrigérateur. Il s'agit de la description des procédures de démarrage et d'arrêt du réfrigérateur.

Le second traite des fonctionnements anormaux d'un réfrigérateur ayant déjà fonctionné normalement. Il s'agit de la description des symptômes et des remèdes des anomalies que l'on peut observer.

Le troisième concerne les anomalies que l'on peut observer lors des premiers essais d'un nouvel appareil.

2.41. PROCEDURES DE DEMARRAGE ET D'ARRET DU REFREGIRATEUR (Schéma n° 13)

a) Généralités

Les procédures que nous décriront sont le fruit de notre expérience sur les réfrigérateurs. Elles sont importantes car elles assurent une bonne fiabilité de l'appareil. En effet il existe deux causes principales au mauvais fonctionnement d'un réfrigérateur.

La première est le bouchage des tubes capillaires, la seconde est l'apparition d'une fuite sur le bon vide. Le bouchage des tubes peut être provoqué soit par des gaz ou de l'eau se solidifiant à basse température et formant ainsi un bouchon, soit par la présence de petites poussières, qui entraînées par le fluide se bloquent dans un coude. Ces bouchages interdisent toute expérience. Afin de les éviter il existe deux moyens : propreté des tubes et des fluides, purge efficace de tous les circuits.

Le premier type de bouchage n'est pas catastrophique car il suffit de laisser l'appareil se réchauffer pour qu'il disparaisse. Une purge efficace du circuit incriminé permet de reprendre l'expérience qui n'a alors subie qu'un retard.

Le second type est par contre beaucoup plus ennuyeux car le débouchage de très petits tubes capillaires est difficile, voire parfois impossible. Le remplacement du tube bouché s'avère alors obligatoire et l'on risque de retomber dans les ennuis dus aux fuites.

Dans un réfrigérateur il existe trois circuits parfaitement indépendants : le circuit He_4, le circuit mélange He_4-He_3, le circuit bon vide.

Toute fuite entre deux de ces circuits perturbe le fonctionnement de l'appareil mais de façons diverses. Toute grosse fuite ne peut évidemment être tolérée. Une petite fuite entre les circuits He_4 et le circuit mélange a pour conséquence (vu la conception de l'appareil) une légère augmentation de la quantité d'hélium-4 du circuit mélange. Si cette augmentation est faible, elle ne tire pas à conséquence. Par contre une fuite entre le circuit mélange et le circuit bon vide détériore rapidement le vide d'isolement de la partie froide interdisant ainsi toute descente en température. Les circuits bon vide et He_4 sont indépendants par construction et il ne peut donc y avoir de fuite entre eux. Les fuites, de plus, sont difficiles à détecter du fait de leur variation en fonction de la température. Elles peuvent n'apparaître qu'à froid par exemple. De plus la superfluidité de l'hélium à basses températures peut rendre une fuite, minime ou même indécelable à chaud, intolérable pour le bon fonctionnement de l'appareil. La question des fuites et de leur détection sera abordée par la suite.

b) Procédure de démarrage du réfrigérateur

Ces principes des anomalies "normales", si on peut dire, d'un réfrigérateur étant posés, il faut y adapter les procédures d'utilisation de l'appareil. La mise en froid de l'appareil se décompose en quatre phases

- l'appareil à l'ambiante
- l'appareil est à une température de 77 K
- l'appareil est à une température de 4,2 K
- l'appareil est à une température très basse.

Les procédures vont donc elles aussi se décomposer en quatre phases chacune se divisant en deux parties : purge des circuits, détection de fuite. La description de chaque étape sera effectuée d'une manière suffisamment détaillée pour pouvoir constituer une liste d'instructions d'utilisation du réfrigérateur.

- L'appareil est à la température ambiante

. Purge des circuits

Une façon satisfaisante de vider les circuits des impuretés qu'ils contiennent (eau, air, etc...) est d'y faire le vide. Une circulation de gaz propre et sec donne également de très bons résultats mais est plus difficile à mettre en oeuvre.

Le circuit bon vide est donc branché sur sa pompe 2002 Alcatel. Le circuit mélange est purgé à l'aide d'une pompe de prévidage (ouvrir les vannes 20 - 21 - 13 - 12 - 11 - 15 - 17 - 4 - 3 - 7 - 8 - 9 - 2 - 1 et 5) aidée par la pompe secondaire ODP 800 (ce qui permet de faire dégazer l'huile de celle-ci).

Seul le circuit He_4 ne peut être purgé de cette façon car son étanchéité vis à vis de l'extérieur est relative (vu le grand volume du dewar à He_4 liquide). Une procédure différente est donc employée. On fait un vide relatif (quelques 10^{-1} Torr) dans l'ensemble du circuit He_4 (pompe ISC 450 en marche, ouvrir les vannes I, IV, V, VI, les vannes II et III étant fermées). On introduit alors de l'hélium par le vase dewar. Cet hélium traverse la fuite poreuse et débouche dans le circuit de pompage du pot à 1 K (couper la pompe, ouvrir très lentement la vanne III). Cette opération faite deux ou trois fois permet de purger le circuit (on arrive à la position suivante : I fermée, II ouverte ainsi que III, IV, V, VI) et de vérifier que la fuite poreuse n'est pas bouchée.

. Détection de fuite

Le vide règne donc dans deux circuits (bon vide et mélange) alors que le circuit He_4 est plein d'hélium gazeux. Le détecteur de fuite est branché sur le circuit mélange. Toute fuite importante entre le circuit He_4 et le circuit mélange est détectée. L'absence de fuites décelables permet de passer à l'étape suivante. Le détecteur est branché sur le circuit bon vide et l'on introduit de l'hélium 4 dans le circuit mélange. La détection étant négative nous pouvons passer à l'étape suivante qui est celle à 77 K. Mais auparavant il est préférable de repurger le circuit mélange et en particulier de le vider de l'hélium qu'il contient, afin que celui-ci ne perturbe pas les tests suivants qui seront effectués de manière identique à celle décrite précédemment. Mais afin de permettre la descente en température de la partie centrale de l'appareil, il est nécessaire de relier celle-ci thermiquement au dewar contenant l'azote liquide à 77 K. Ce pont thermique est réalisé grâce à une injection d'azote sous faible pression (ou d'argon, ou d'hydrogène) dans les circuits mélange et bon vide. Ces opérations faites on remplit le dewar à azote.

- L'appareil est à la température de 77 K

L'appareil atteint cette température 12 heures environ après le premier plein d'azote. Le reremplissage est nécessaire au bout de ce laps de

temps du fait de la consommation élevée due à la réfrigération de l'ensemble (20 à 30 litres d'azote liquide).

. Purge des circuits

La purge des circuits consiste à les vider de l'azote qu'ils contiennent.

. Détection de fuite

Cette détection est identique à celle effectuée à l'ambiante. Seule la préparation de l'étape suivante est différente. En effet il s'agit d'amener l'ensemble de l'appareil à 4,2 K. Or il est nécessaire d'utiliser un gaz d'échange afin de créer un pont thermique entre le dewar à hélium liquide et la partie centrale de l'appareil. Le seul gaz utilisable à cette température est l'hélium. Toute détection de fuite ne pourra se faire qu'après un temps très long, car il faudra d'abord pomper ce gaz qui souvent sera piégé sur les parois. Afin d'éviter une perte importante de temps la détection de fuite est abandonnée. Après le test effectué à 77 K le circuit bon vide comme le circuit mélange contiennent de l'hélium. L'hélium contenu dans le circuit bon vide servira de gaz d'échange. Par contre il est plus intéressant de remplacer l'hélium 4 contenu dans le circuit mélange par le mélange lui-même qui fera fonction de gaz d'échange, (ceci évite le pompage délicat de l'hélium 4 à 4,2 K). Pour ce faire on vide le circuit mélange grâce à la pompe de prévidage (fermer toutes les vannes dès que cette opération est terminée). On introduit ensuite par le circuit normal de circulation du mélange, ce qui permet de tester le non bouchage du circuit (remplir le piège destiné à purger le mélange d'azote liquide, puis ouvrir les vannes 18 - 19 - 6 - 9 - 15 - 20 - 21, suivre ensuite la remontée de pression sur la jauge Mediovac, enfin finir de vider les bombonnes de stockage à l'aide de la pompe 2008 H, fermer 9 - ouvrir 7 - 8 - 4, mettre la pompe en route, en fin d'opération arrêter la pompe et fermer toutes les vannes).

Il faut alors effectuer le siphonage de l'hélium liquide.

- L'appareil est à la température de 4,2 K

La descente en température de 77 K à 4,2 K nécessite environ 1 heure. Après quoi il faut engager la procédure de démarrage de l'appareil. L'hélium 4 qui se trouve dans le bon vide doit être retiré. On le pompe donc grâce à la pompe prévue à cet effet (primaire puis secondaire dès que la pression est inférieure à 10^{-1} Torr).

En même temps le pot à 1 K est mis en route. Pour celà il suffit de provoquer l'évaporation forcée de l'hélium 4 qu'il contient grâce à la pompe ISC 450. La baisse de température ainsi provoquée entraîne la condensation du mélange qui se trouve dans l'échangeur de condensation. Il suffit de faire circuler le mélange pour le condenser dans son ensemble . La circulation du mélange entraîne la descente en température.

Pour démarrer cette circulation certaines précautions sont à prendre. Je préconise, afin d'éviter toute erreur de manipulation de fermer toutes les vannes du circuit mélange sauf la vanne n° 20. Afin de pouvoir mettre en marche la pompe de circulation (2008 H) il est nécessaire de s'assurer que la pression au refoulement ne peut pas remonter à des pressions telles qu'un joint puisse lâcher. Pour celà on ouvre les vannes du circuit sécurité et du refoulement (4 - 7 - 10 - 15) On met la pompe en route. On ouvre alors l'aspiration (vanne 12) afin que la circulation commence.

La pression à l'aspiration étant relativement élevée, la sécurité joue son rôle. Puis le mélange se condense petit à petit dans la partie froide. La pression à l'aspiration baisse.

Lorsqu'elle est suffisamment basse, on met en chauffage la pompe Booster ODP 800 mais en laissant fermée la vanne tiroir 21 qui la surmonte. En effet, au démarrage une partie de l'huile se vaporise sous forme de brouillard (aérosol et vapeur). Si la vanne était ouverte, ce brouillard irait se condenser sur la partie la plus froide de l'appareil qu'il rencontrerait soit le pot à 1 K. L'énergie alors amenée suffit à désamorcer celui-ci.

Il faut laisser chauffer la pompe Booster pendant environ 20 minutes. On met alors cette pompe en circuit en ouvrant 2I mais doucement car celà provoque une brutale remontée de pression au refoulement. On ferme ensuite le by-pass (20). Le circuit est alors en fonctionnement normal.

Le phénomène de quasi évaporation apparaît et la température descend rapidement.

- L'appareil est aux basses températures

Durant toute la manoeuvre précédente, le bon vide a été pompé. On le branche sur le détecteur de fuite afin de détecter toute grosse fuite éventuelle entre le bon vide et le circuit mélange. Au début le détecteur reçoit beaucoup d'hélium, car il reste du gaz d'échange piégé sur les parois; mais cette quantité diminue relativement rapidement par cryopompage sur les parois

très froides. Si ce n'est pas le cas au bout de quelques heures, c'est qu'il y a une fuite. Il est alors nécessaire d'arrêter l'expérience (voir les procédures d'arrêt). S'il n'y a pas de fuite, il suffit alors d'assurer la maintenance normale de l'appareil, c'est-à-dire les pleins d'azote (Dewar d'isolement et Dewar des pièges) toutes les 24 heures et le plein d'hélium (Dewar d'isolement) toutes les 24 heures.

Seule cette dernière opération nécessite quelques précautions. En effet lors du branchement de la canne de transfert de l'hélium, il ne faut pas que la partie fixe de celle-ci qui débouche dans le dewar se bouche par de l'air.

Au cas où cela se produit, le débouchage de la partie fixe de la canne de transfert se fait par injection d'hélium gazeux par un petit tube d'inox de Ø 1x1,8; cette opération est délicate.

Pour éviter cet inconvénient il est de bonne pratique que la récupération soit en légère surpression par rapport à l'air extérieur évitant ainsi l'introduction d'air dans la canne. Mentionnons également ici que la partie fixe de la canne de transfert n'est pas fermée sur elle-même en fin d'utilisation, mais est reliée à la récupération : ceci évite l'apparition éventuelle d'oscillations thermo-acoustiques.

c) Procédure d'arrêt de l'appareil

L'appareil étant froid, il s'agit d'arrêter l'expérience. Pour celà, afin de revenir à l'état de départ, il est nécessaire de récupérer le mélange dans les bonbonnes de stockage.

On arrête donc la circulation normale et on branche le refoulement de la pompe sur les bonbonnes (ouvrir 18 - 19 - 5 puis fermer 7). Afin de hâter cette récupération on va aussi pomper le mélange par le circuit normal de refoulement (ouvrir 8) tout en shuntant le piège afin d'éviter un passage lent de l'hélium à travers celui-ci (ouvrir 17 et 11).

Le mélange se trouvant dans la partie froide de l'appareil est liquide. Son extraction des petits tubes capillaires est donc difficile. Il faut afin d'éviter une perte de temps importante, réchauffer cette partie froide mais pas brutalement pour éviter toute surpression pouvant provoquer des fissures en particulier des brasures tendres de la partie froide. Pour celà on arrête le pot à 1 K (couper la pompe ISC 450 et ouvrir doucement la vanne V) puis on vide l'azote du dewar d'isolement ceci accélérant l'évaporation de l'hélium 4 du dewar interne (cette évaporation peut être accélérée en

faisant passer un courant électrique dans les résistances de mesure du niveau de He_4).

Lorsque la pression dans les bonbonnes de stockage est revenue à sa position de départ on arrête le pompage (ouvrir 20, fermer 2I, couper la pompe ODP 800 ; lorsqu'elle est froide fermer 8 et 12, arrêter la pompe 2008 H, fermer 4 - 5 - 18 - 19) Mais des impuretés (air en particulier) peuvent être piégées dans le circuit mélange (en particulier dans les pièges). Il est donc nécessaire de poursuivre le pompage afin d'éviter toute remontée de pression (mettre en route pompe de prévidage, ouvrir 11 et 13, retirer l'azote du dewar des pièges).

Lorsque la température de l'ensemble atteint la température ambiante, on peut casser les vides (doucement afin de ne pas introduire de poussières) si des modifications sont nécessaires. Sinon il est préférable de laisser l'ensemble sous vide, ce qui assure une bonne propreté des circuits.

2.42. LES ANOMALIES DE FONCTIONNEMENT D'UN REFRIGERATEUR AYANT DEJA FONCTIONNE NORMALEMENT.

a) Anomalies de fonctionnement

Les anomalies de fonctionnement d'un réfrigérateur ayant déjà fonctionné ont deux causes principales : les fuites et les bouchages. Les symptômes révélateurs de ces anomalies ont été décrits au paragraphe 1 . Je vais dans ce paragraphe traiter des remèdes, qui seront, comme il se doit, d'une part préventifs, d'autre part curatifs. Les bouchages peuvent être source de sérieux ennuis mais les problèmes qu'ils occasionnent sont moins graves pour les réfrigérateurs à dissolution que pour les liquéfacteurs d'hélium, parce que les quantités de gaz circulées sont beaucoup plus faibles et les circuits de fluide sensiblement plus "propres". Les problèmes qu'ils occasionnent feront l'objet du dernier paragraphe de ce chapitre, consacré d'abord à la détection de fuite.

En effet, la grande complexité de la tuyauterie miniature et la qualité très exigeante du vide d'isolement dans les réfrigérateurs à dissolution ont conduit à un raffinement des méthodes traditionnelles de détection des fuites et à quelques innovations, dues pour la plupart à M. P. Roubeau. Il n'a pas paru superflu de décrire ici d'une part les opérations de routine que constituent les tests d'étanchéité et la recherche des fuites à température ambiante,et d'autre part des procédures dictées par la nécessité et plus adaptées à la localisation des fuites se produisant à basses températures.

b) Contrôles d'étanchéité : le test global à l'ambiante

Le contrôle d'étanchéité a pour but de s'assurer de l'absence de fuite entre le vide d'isolement et chacun des circuits qui y baignent (circuit mélange et autres) ou l'entourent(bain principal hélium-4).

Ce contrôle s'effectue suivant l'usage établi à l'aide d'un détecteur de fuite à spectromètre de masse (38) en utilisant l'hélium-4 comme gaz traçeur. L'hélium-3, présent dans le circuit mélange peut également être utilisé comme traçeur mais cela nécessite un changement de réglage de la tension d'extraction de la cellule de spectrométrie de masse; il faut alors prendre garde au fait que la molécule hydrogène deutérium donne un signal pour cette même tension de réglage. L'hydrogène naturel contient environ 1/6400 de deutérium. HD peut constituer un fond gênant pour la lecture de He_3.

Le contrôle d'étanchéité s'effectue par un test global : le spectromètre de masse est relié au bon vide et les différents circuits sont pressurisés à l'hélium-4 à tour de rôle.

La sensibilité ultime d'un test global dépend 1) du bruit propre de la cellule de spectromètre - 2) du signal rémanent (ou plutôt de ses fluctuations) dû à l'hélium-4 présent dans le circuit. A chacun de ces deux facteurs vient s'ajouter la durée de la détection de fuite qui permet de réduire graduellement l'influence du bruit et d'observer la variation du signal rémanent (variation dans le temps et avec la température ambiante).

Le plus petit débit d'hélium-4 détectable par l'appareil dont nous disposons au Laboratoire (Alcatel ASM-4) est de l'ordre de 10^{-10} cm^3- atmosphère/sec soit environ 2,5 10^9 atomes d'hélium-4 par seconde. La saturation de l'appareil se produit pour des fuites 10^5 fois plus grandes. De telles fuites sont à la limite de ce qui est décelable par la méthode du bulle à bulle, utilisée pour vérifier l'étanchéité des chambres à air d'autos ou de vélos : elles produisent une bulle de $1mm^3$ toutes les 100 secondes.

Le test global peut être poussé au-delà du seuil de 10^{-10} cm^3 atmosphère/sec par accumulation : cette méthode s'est révélée difficile à mettre en pratique à cause de la rétention d'hélium dans les circuits du réfrigérateur. Le taux de fuite tolérable ne peut pas, comme il apparaîtra plus loin, être défini à la température ambiante.

La question de la perte thermique parasite apportée sur la chambre de mélange par une pression partielle d'hélium résiduelle dans le bon vide du réfrigérateur à dissolution sera examinée au chapitre 3. La conclusion est

que la pression partielle d'hélium du bon vide doit être de l'ordre de 10^{-8} Torr ou mieux. Avec une vitesse de pompage de l'ordre de 0,1 litre/sec, les fuites tolérables sont de l'ordre de 10^{-9} litre Torr/sec, ce qui est voisin du seuil de détection du spectromètre de masse. La règle est donc que tout signal de fuite décelable révèle un défaut qui doit être corrigé. Cette règle n'est toutefois pas à prendre au pied de la lettre car, comme je l'indiquerai plus loin, il est possible d'augmenter les vitesses de pompage du bon vide lorsque le réfrigérateur est en froid.

Le test global d'étanchéité à l'ambiante n'est qu'une étape, suivie selon le cas de la localisation de la fuite ou du test global à froid. Avant d'examiner ces opérations, je vais décrire d'une manière générale les fuites suivant leur nature et les paramètres qui les caractérisent .

c) Caractérisation des fuites

Caractériser une fuite signifie deux choses :

1) Spécifier les paramètres de la réponse du spectromètre quand la fuite est testée d'une manière définie ; c'est-à-dire par une pression d'hélium donnée, à une certaine température. Ces paramètres sont le taux de fuite, qui varie donc de 10^{-10} litre Torr/sec à plusieurs fois la saturation du détecteur de fuite, et le temps d'établissement normal du signal, qui peut aller de quelques secondes à quelques dizaines de minutes. Le temps de réponse est un paramètre dont l'importance est parfois négligée pour les petits systèmes. En l'absence de gros volumes, il est conditionné par la nature de la fuite et constitue un élément déterminant pour le choix de la technique de localisation de cette dernière.

2) Décrire la nature physique de la fuite quand elle a été localisée avec suffisamment de précision. Ceci, qui est une démarche inconsciente et de routine dans la plupart des cas, est à considérer avec attention quand un appareil, ou une technique, ou un matériau nouveau sont aux essais. Une fuite peut être accidentelle; elle peut également avoir un certain caractère systématique. Il est important de déceler un défaut systématique ainsi que ses causes et d'y porter remède avant que la fréquence des "accidents" ne devienne prohibitive.

- Géométrie des fuites

Pour préciser les deux points ci-dessus je vais traiter le cas de quelques fuites simples et pour commencer celui d'un orifice microscopique. Le débit massique maximum d'un gaz parfait passant à travers un orifice

circulaire de section S d'une région où sa densité est ρ et sa pression P à une région où la pression est suffisamment basse pour que la détente soit sonique, est donné par la relation suivante (39)

$$\dot{m} = \frac{2}{\gamma+1}^{\frac{1}{\gamma-1}} \left(\frac{2\gamma}{\gamma+1} P\rho\right)^{1/2} S$$

γ est le rapport des chaleurs spécifiques. Pour de l'hélium-4 à la température T, cette formule conduit au débit molaire suivant :

$$n = 4{,}1\ 10^{-4} \frac{SP}{T^{1/2}}$$

soit 3×10^{-3} 1 Torr/sec à température ordinaire pour un orifice de 1 µm de diamètre et une pression amont d'une atmosphère.

D'évidence un tel type de fuite doit être assez rare dans la nature. Quand il apparaît, il donne tout de suite lieu à une fuite importante. Il est aisément détectable.

Lorsque les dimensions géométriques des canaux microscopiques deviennent plus petites que le libre parcours moyen des molécules du gaz, l'écoulement devient moléculaire :

$$\dot{m} = \frac{1}{6} \sqrt{\frac{2\pi m}{k_B T}} \frac{d^3}{L} (P_1 - P_2)$$

(K_B constante de Boltzmann)

pour des molécules de masse m passant dans un canal microscopique circulaire de diamètre d, de longueur L, à la température T, sous une différence de pression $P_1 - P_2$. Le cas du canal microscopique diffère de celui de l'orifice par la présence d'un facteur peu différent de $\frac{1}{2} \frac{d}{L}$ qui peut éventuellement être très petit. Un canal circulaire de 250 Å de diamètre et de 0.5 mm de long donne une fuite qui correspond à la sensibilité limite du spectromètre de masse.

Il est toutefois permis de penser que les rapports $\frac{d}{L}$ rencontrés dans des matériaux homogènes sont rarement inférieurs à 10^{-2} ou 10^{-3} et que par conséquent plusieurs fuites de ce type doivent être mises bout à bout pour traverser un matériau massif. Une telle mise bout à bout fait appel à la théorie mathématique de la percolation, utilisée enparticulier pour expliquer ces transitions métal-isolant. L'analogie avec cet exemple montre qu'il est nécessaire d'atteindre une certaine densité de microfuites pour qu'une fuite macroscopique se déclare, mais que lorsque ceci se produit, il y a de nombreux canaux en parallèle et la fuite est importante. Il en résulte

que dans la plupart des cas, les blocs massifs seront soit étanches soit grossièrement défectueux.

Il existe néanmoins des exceptions à cette règle qui tend à bannir les micro-fuites. Elles font appel soit à la diffusion dans des matériaux polymérisés qui présentent peu de cohésion entre chaînes de macromolécules ou dans des verres, soit à des microporosités comme celle que présente le cuivre atteint de la maladie de l'hydrogène. Alors que la diffusion dans les plastiques et les verres cesse lorsqu'on abaisse la température il n'en est pas de même dans un cuivre défectueux. Les fuites qui en résultent sont très petites et extrêmement difficiles à déceler. La raison de cet état de chose est peut être que le mécanisme qui crée la porosité s'arrête de lui-même lorsqu'il atteint le seuil de percolation, ce qui pourrait être le cas d'un cuivre oxydulé réduit par recuit sous hydrogène : la porosité est créée par la vapeur d'eau de réduction cherchant à se libérer. Les quantités d'eau mises en jeu étant très faibles, les premiers pores ouverts suffisent pour l'éliminer.

- Colmatage naturel des microfuites à la température ambiante

Du fait des conditions géométriques les fuites de très petits débits sont rares et cette tendance est renforcée par un autre facteur : le colmatage naturel.

Ce colmatage naturel peut être dû à plusieurs causes :

1) apparition de combinés chimiques superficiel, par exemple des hydrates ou des hydro-carbonates.
2) adsorption d'eau, de solvants, d'huiles sous forme de couche monomoléculaire.
3) jeu des forces capillaires retenant un liquide dans des micropores.
4) action des forces osmotiques, provoquant des rétentions d'eau.

Ces quatre causes de colmatage des fuites sont afférentes aux différents types de liens par lesquels des molécules peuvent être captées par une surface (40).

L'efficacité des deux premières est essentiellement liée à la taille géométrique des composés formés ou des molécules adsorbées. Les molécules d'huiles à poids moléculaire élevé utilisées en technique du vide ont des diamètres moyens de l'ordre de 10 Å. (41). Il est difficile de concevoir que des interstices de 20 ou 30 Å restent libres et ne soient pas colmatés par les vapeurs d'huile.

Alors que la quatrième cause se limite au cas de l'eau essentiellement, la troisième, l'action des forces capillaires, est très générale. Cette action est aussi très efficace. En effet, la différence de pression maintenue par la tension superficielle entre les bords concave et convexe d'une surface de rayon de courbure moyen R est donnée par la formule de Laplace (42)

$$\delta p = \frac{2\sigma}{r}$$

σ est par définition la tension superficielle. Cette quantité vaut typiquement 20 à 40 dyne/cm pour un liquide organique à faible tension de vapeur. La courbure correspondant à une différence de pression δp de 10^6 barye (1 atmosphère) est ainsi 4×10^{-5} cm, ce qui fixe à une fraction de micron la taille maximale des pores susceptibles d'être colmatés d'une manière durable par des liquides non volatils.

Il est clair que des graisses, vernis, résidus de décapant et autres poussières de toute nature peuvent contribuer à l'obstruction des fuites à la température ambiante. Toutes ces causes concourrent au colmatage naturel des fuites à la température ordinaire. Elles disparaissent néanmoins et à haute température, lors d'un étuvage poussé, et à basse température, lorsque les liquides gèlent et que les contraintes thermiques entrent en jeu.

d) Contrôle d'étanchéité à la température de l'azote liquide

A 77 K, les contractions thermiques sont presque complètes, les transformations de phase sont intervenues, les liquides gelés, les adhésifs souvent décollés, les microfuites débouchées.

C'est à cette température qu'un test global d'étanchéité prend toute son importance. D'après l'expérience accumulée à l'Institut d'Electronique Fondamentale et à l'Orme des Merisiers (CEA-Saclay), une pièce trouvée étanche à la température de l'azote liquide a toute chance de l'être également à celle de l'hélium liquide. Il semblerait que nous n'ayons rencontré qu'une exception à cette règle, un seul cas d'une fuite très importante en dessous du point λ et indécelable à la température de l'azote.

Difficulté du contrôle d'étanchéité à 4,2 K

Ayant donc souligné qu'un contrôle d'étanchéité à l'ambiante est incomplet en ce qui nous concerne, je vais maintenant montrer qu'un test à la température de l'hélium ne fournit pas d'indications aisément interprétables. La raison en est que les atomes d'hélium sont à cette température aisément

adsorbés sur toute paroi. L'isotherme d'adsorption de l'hélium sur le cuivre à 4,2 K a été mesurée par N.P. Danivola et A.J. Shal'nikov (43)

La quantité d'hélium adsorbé, Q exprimée en cm^3/cm^2 est donnée entre 10^{-5} et 10^{-11} Torr en fonction de la pression P en Torr par la relation suivante :

$$\log_{10} Q = -4 + \frac{1}{4} \log_{10} P$$

La dépendance de Q en $P^{1/4}$ a été observée pour d'autres gaz rares adsorbés à basse pression sur des surfaces métalliques (44). La valeur de Q pour P = 1 Torr correspond, chaque atome occupant un carré de 3,5 Å de côté, à trois couches d'atomes adsorbés.

Ce phénomène d'adsorption entraîne deux effets. D'abord une paroi parfaitement vierge d'hélium mise en présence d'une pression (partielle) d'hélium même extrêmement faible, se couvrira d'au moins une, et éventuellement plusieurs suivant la température ($T < 4,2$ K), couche monoatomique. La quantité d'hélium adsorbé à la pression de 10^{-9} Torr est d'environ 3×10^{-7} cm^3/cm^2, soit 8×10^{12} atomes par cm^2, soit encore le débit d'une fuite correspondant à la sensibilité limite du détecteur ($2,5\ 10^9$ atomes par seconde) pendant près d'une heure. Ces ordres de grandeur ont été vérifiés dans la pratique. Des fuites de quelques 10^{-7} cm^3- atm/sec restent invisibles pendant des temps qui dépendent de la superficie totale et de l'état des surfaces refroidies. Il peut s'écouler plusieurs heures avant que le moindre signal de fuite apparaisse.

La deuxième conséquence entraînée par le phénomène d'adsorption est l'effet inverse de celui qui vient d'être décrit. Elle est liée au piégeage et dépiégeage des atomes adsorbés lorsque la température varie. Les effets engendrés sont importants et obscurcissent considérablement les signaux de détection de fuite. Ces effets sont liés à la chaleur latente d'adsorption par l'équation de Clapeyron

$$\frac{d \text{ Log } P}{d\ (1/T)} = - \frac{L_A}{R}$$

La chaleur d'adsorption L_A est d'environ 400 Joule/Mole pour la première couche monoatomique 150 J/Mole pour la seconde, respectivement 420 et 120 J/Mole sur du néon solide, 260 et 175 sur l'oxygène et l'azote, 390 et 215 sur du verre (45). Pour les couches supplémentaires, cette quantité tend vers la valeur de la chaleur latente de condensation, qui est de 82 J/Mole à 4,2 K.

Pour une concentration donnée d'atomes adsorbés, la pression d'équilibre varie exponentiellement avec l'inverse de la température, comme $\exp\left(-\frac{LA}{RT}\right)$, l'exposant étant de l'ordre de 48 Kelvin aux très faibles pressions. Cette variation est extrêmement rapide : la pression d'équilibre le long d'une isotère double pour un écart de température de 0,25 K à la température moyenne de 4,2 K.

Toute tentative de détection de fuite entraîne des manipulations sur de l'hélium liquide, gazeux ou adsorbé et se traduit nécessairement par des variations de température. Ces variations de température s'accompagnent d'effets importants d'adsorption et de désorption qui rendent l'interprétation des signaux du spectromètre de masse très difficile. Une détection de fuite à la température de l'hélium ne peut être entreprise que dans certains cas simples et quand les effets thermiques sont contrôlables. Elle ne peut être évitée en présence d'une superfuite qui n'apparaît qu'en dessous du point λ .

Méthodes de localisation des fuites à 77 K

L'existence d'une fuite ayant été décelée par le test global, la première opération consiste à mesurer la grandeur de la fuite et son temps de réponse. Ces deux paramètres permettent de choisir la méthode à utiliser pour la localisation de la fuite.

Trois cas peuvent se présenter

1) Temps de réponse court (quelques secondes), débit supérieur à 10^{-9} l Torr/sec : la détection se fait au jet, la pièce à détecter étant partiellement immergée dans l'azote liquide.

Il faut noter que l'azote est un liquide très mouillant et qu'aucun signal n'est donné par une fuite recouverte d'un film d'azote liquide - (et, a fortiori, si la fuite est totalement immergée dans le liquide); cette propriété est précieuse pour aider à localiser la fuite. Un autre point qu'il convient de mentionner est que le givre se formant éventuellement sur les pièces froides ne paraît pas entraver énormément la détection de fuite.

Finalement, il va de soi que la fuite n'est correctement localisée que lorsque le signal obtenu par aspersion avec un jet d'hélium gazeux très réduit correspond en débit et temps de réponse à celui observé lors du test global.

2) Temps de réponse long (quelques dizaines de secondes et plus) débit supérieur à quelques 10^{-8} l Torr/sec : la détection se fait au renifleur

la pièce à détecter étant partiellement immergée dans l'azote liquide.

Le principe du renifleur que nous utilisons est dû à M. P. Roubeau. Il se compose d'un capillaire partiellement obstrué par une aiguille, relié à un piège à charbon par un tuyau souple . L'autre extrémité du piège à charbon est connectée au détecteur de fuite. Le schéma de branchement de l'ensemble renifleur-détecteur est donné figure n° 25.

L'impédance à l'écoulement du renifleur que nous avons construit est de 8×10^{9} cm^{-3} (en régime laminaire). Le conduit annulaire constituant cette impédance à 5 cm de long et un diamètre moyen de 7×10^{-2} cm. Par application de la formule donnant l'impédance d'un conduit rectangulaire de longueur L et d'épaisseur e faible devant sa largeur ℓ ,

$$Z = 12 \frac{L}{e^3 \ell}$$

il vient que l'interstice annulaire vaut environ $3,25 \times 10^{-3}$ cm. Comme on peut le vérifier, l'écoulement dans cette impédance obtenu avec une pression amont d'une atmosphère et une pression aval de quelques 10^{-1} Torr est subsonique, laminaire. Avec l'hypothèse supplémentaire qu'il est isotherme, cet écoulement présente un débit volumique V_i à la pression initiale P_i donné par la relation suivante (la pression finale étant négligeable)

$$V_i = \frac{P_i}{2 \eta Z}$$

η étant la viscosité du fluide (environ $2\ 10^{-4}$ Poise pour l'air à la température ordinaire). Ce débit volumique vaut donc :

$$V_i = 0,315 \text{ cm}^3 \text{. atm/sec.}$$

Un tel débit d'air est évidemment assez considérable et ne peut être absorbé tel quel par le système de pompage secondaire du spectromètre de masse. C'est la raison d'être du piège à charbon actif refroidi à l'azote liquide. Quelques cm^3 de charbon suffisent pour absorber l'air avalé par le renifleur pendant plusieurs heures. Seuls l'hélium, le néon et l'hydrogène ne sont pas absorbés et vont dans le spectromètre de masse. Les teneurs en volume de ces gaz dans l'air sec sont en faits par million, 5.24 (He), 18,2 (Ne), 0.5 (H_2) (46) ; Le signal naturel dû à l'hélium de l'air doit donc valoir:

$$V_{\text{hélium}} = 0,315 \times 5,24 \times 10^{-6} = 1,65\ 10^{-6} \text{ cm}^3\text{- atm/sec.}$$

Le signal effectivement observé est de $1,4 \times 10^{-6}$ cm^3-atom/sec la

sensibilité de la cellule de spectrométrie de masse étant déterminée à l'aide d'une fuite-étalon de 3×10^{-7} cm^3-atm/sec.

Comme ces chiffres le révèlent clairement, un tel renifleur ne peut détecter que d'assez grosses fuites en présence d'air ; ses avantages sont néanmoins les suivants :

- localisation très précise des fuites,
- temps de réponse uniforme de quelques secondes
- possibilité de détecter des enceintes dans lesquelles il n'est pas possible de faire le vide.

Avec une atmosphère protectrice, comme celle régnant au voisinage de la surface de l'azote liquide contenu dans un bac en polystyrène expansé, le renifleur recouvre sa pleine sensibilité et permet de localiser des fuites de l'ordre de 10^{-9} cm^3-atm/sec.

Les procédures de détection de fuite à l'aide d'un renifleur du type décrit demandent une certaine pratique et sont assez longues , ce renifleur n'indiquant un signal qu'au voisinage immédiat de la fuite. Tout signal diffus doit être interprété comme provenant d'une turbulence amenant de l'hélium atmosphérique au voisinage du renifleur. Certaines fuites à grande constante de temps ne peuvent être localisées qu'à l'aide d'un renifleur. Son usage est ainsi parfois indispensable.

3) les très petites fuites : Les très petites fuites sont celles inférieures à 10^{-8} cm^3-atm/sec; elles ont souvent un temps de réponse assez long - Comme je l'ai montré plus haut, de telles fuites sont très rarement observées à la température ambiante. Elles apparaissent à la température de l'azote liquide et sont très difficiles à localiser. Il est possible qu'une longue et minutieuse recherche par les méthodes décrites plus haut n'aboutisse pas. Dans une telle situation, l'alternative est la suivante. Ou bien, l'existence d'une telle fuite est une gêne mineure, et on pourra y palier à l'aide d'absorbants ; l'utilisation du charbon actif sera décrite brièvement plus loin. Ou bien, la fuite doit être éliminée (cas de mesures calorimètriques, ou de déterminations précise des températures). Les recours sont alors les suivants : chocs thermiques répétés pour tenter d'agrandir la fuite, utilisation de hautes pressions pour augmenter le signal de fuite, fractionnement du système à détecter. De toute évidence, ces procédures sont laborieuses; ce sont les seules, avec la réfection systématique du système fuyant, auxquelles on peut faire appel en cas de toutes petites fuites à 77 K qui s'accroissent catastrophiquement en présence de superfluide.

e) Adsorbants - Charbon actif

En cas de fuite irréductible de petite taille, il est possible d'utiliser des adsorbants. Comme je l'ai déjà mentionné au paragraphe 2.42 d., le cuivre et toute autre paroi solide, peuvent adsorber sous très basse pression, une certaine quantité d'hélium, équivalent grosso modo à une couche monoatomique.

La surface interne de la partie froide étant de l'ordre de 1000 cm^2, elle peut adsorber environ 10^{16} atomes avec une pression résiduelle de l'ordre de 10^{-9} Torr ce qui correspond à la quantité de gaz libéré par une fuite de 10^{-8} cm^3.atm/sec débitant pendant 10 heures. La situation réelle est compliquée par l'utilisation d'hélium comme gaz d'échange; cet hélium "sature" toutes les surfaces à 4.2 K qui, à moins d'opérations particulières (étuvage à 10 K), se comporteront ensuite comme des fuites virtuelles. Un autre élément à prendre en ligne de compte est le pompage dynamique du bon vide; la conductance du tube de pompage est faible, de l'ordre de 0,1 l/sec, mais la vitesse de pompage qui en résulte permet quand même d'annuler de toutes petites fuites.

On peut tenter d'augmenter la vitesse de pompage apparente pour contrebattre les effets d'une fuite en utilisant des absorbants à grande capacité, comme le charbon actif ou la zéolithe. A 4,2 K, le charbon actif Prolabo absorbe jusqu'à 500 cm^3/g d'hélium-4, la zéolithe Varian 200 cm^3/g le charbon actif CECA, 380 cm^3/g. Ces chiffres, obtenus à la pression d'équilibre de 1 Torr, sont valables pour les absorbants que nous utilisons et nous ont été communiqués par M. P. Roubeau. Ils indiquent que les capacités par cm^3 d'absorbants sont essentiellement les mêmes et sont de l'ordre de 150 cm^3 He_4 TPN/cm^3.

Deux questions se posent néanmoins au sujet de l'utilisation de ces absorbants comme pompe à ultra-vide :

- a) quel est le vide limite statique?
- b) comment la cinétique d'adsorption influence-t-elle la vitesse de pompage et le vide limite dynamique?

La première de ces questions possède une réponse théorique, fondée sur la mécanique statistique classique, selon laquelle la quantité de gaz adsorbée devient, à très basse pression, proportionnelle à la pression[47] Cette loi semble vérifiée aux températures de l'hydrogène liquide (20,4 K) et de l'azote liquide (77 K) [48]. Elle ne l'est pas dans les travaux de

A.I. Shal'nikov et ses collaboratrices [43] pourtant effectués à très basse pression, ni dans les extrapolations des mesures très minutieuses effectuées à plus haute pression par M. P. Roubeau.

La seconde question, à laquelle il est également impossible de répondre de manière précise, explique en partie l'absence de réponse expérimentale définitive à la première. Les temps de mise en équilibre à très basse pression sont très longs et les phénomènes parasites d'adsorption et de désorbption viennent perturber la mesure.

Notre expérience pratique est la suivante. Nous avons observé des pressions partielles d'hélium-4 de l'ordre de 2×10^{-8} Torr, ramenés à l'ambiante, mesurées au spectromètre de masse, sur du charbon actif CECA ayant absorbé environ $1 cm^3/g$, refroidi à la température de 0,6 K. Il semble que le charbon actif puisse avoir une certaine efficacité pratique pour maintenir un ultra-vide quand il est refroidi à suffisamment basse température.

f) Fuites : autres aspects pratiques et conclusion

Malgré le choix le plus judicieux des matériaux de construction et des méthodes de jointure, choix exposé au chapitre 1 , il apparaît que les fuites sont, dans une mesure qui peut quand même être considérablement réduite, inévitables .Une telle éventualité doit être présente à l'esprit lors de la conception de la partie froide qui doit pouvoir supporter des surpressions assez élevées et des chocs thermiques à l'azote liquide violents et répétés. Egalement, un certain degré de "démontabilité" est souhaitable, cette exigence étant en contradiction avec celle de la recherche de la simplicité, meilleure garante du bon fonctionnement des appareils. Enfin, comme il l'a déjà été indiqué au chapitre 2 , une hiérarchisation des vides et des étanchéîtés doit être observée.

Les méthodes de détection de fuite qui viennent d'être décrites sont celles qui se sont avérées les plus efficaces et les mieux adaptées au problème de l'étanchéîté des réfrigérateurs à dissolution. Les méthodes habituelles sont décrites dans certains articles et ouvrages [49]. Il apparaîtra peut être que nos méthodes relèvent moins d'un certain sport -leak hunting - que d'un esprit systématique appliqué à un problème technologique.

Pour conclure ce paragraphe, je dresse brièvement une liste d'une part des matériaux sur lesquels nous avons observé des fuites, d'autre part des types de fuite que nous avons rencontrée :

- inox en paroi mince : piqûres et fentes ou criques, surtout dans des épaisseurs inférieures à 5/10 de mm. Ces fuites sont parfois partiellement colmatées par de la rouille et difficiles à déceler. La rouille se désagrège aux chocs thermiques.

- laiton : criques et cassures, surtout au centre de rondins à décolleter, donnant de grosses fuites. Le "season-cracking" dû au mauvais recuit de certains laitons est devenu rare.

- cuivre : porosité due à la maladie de l'hydrogène, et peut-être aussi une fuite due à un écrouissage de façonnage trop violent. En général, ces fuites sont très petites, très difficiles à déceler.

- verre : en général étanche - Les fuites, rares, sont aisément détectable. La plupart des qualités de verre sont poreuse à l'hélium à l'ambiante.

- perles de verre : une très grande circonspection est à observer. Certains passages à perle de verre fritté sont étanches et résistent aux chocs thermiques. Etant précontraints, il faut les monter libres de toute contrainte supplémentaire.

- plastiques : l'épibond 100 A, la Stycast 2850 et le makrolon peuvent subir un grand nombre de chocs thermiques. En général les fuites apparaissent par cassure et sont importantes à froid.

- joints soudés ou brasés : toutes sortes de fuites, en général grosses, souvent partiellement obstruées par des résidus de flux ou des liquides de nettoyage. Le vieillissement des joints aux chocs thermiques est peu important si les contractions thermiques différentielles jouent dans le bon sens (laiton à l'extérieur de l'acier inoxydable, tolérances mécaniques des pièces emboîtées respectées,..). Les soudures tendres peuvent casser aux efforts mécaniques.

- joints toriques : fuites rares, sauf erreur de conception (écrasement du joint insuffisant, ou au contraire trop important, ce qui entraîne un machurage du torique). Il faut noter que le caoutchouc, comme les autres polymères, laisse diffuser les gaz et en particulier l'hélium à un taux approximatif de 10^{-9} cm^3 TPN cm^{-2} (surface), cm (épaisseur) sec^{-1}, cm^{-1} Hg (diff. pression) à 23°C (50), ce qui se traduit immanquablement par une fuite faible à longue constante de temps.

- fuites différées ou à antichambre ; ces fuites résultent de la mise en série de deux fuites séparées par un volume mort et donnent un temps de réponse long.

- fuites à occultation : elles sont liées à la présence d'un liquide (mercure, huile, ...)

- fuites à obturation temporaire : mouillées par un liquide volatil qui gèle en s'évaporant, les fuites, même grosses, peuvent se boucher temporairement. Cette propriété peut être mise à profit pour la localisation précise des fuites à l'ambiante en mouillant l'endroit suspect avec de l'alcool au moyen d'un petit pinceau.

- fuites fictives : une pression totale qui ne descend pas ou un signal rémanent d'hélium ne sont pas synonymes de fuite. Les tubes souples en gomme à vide, l'huile des pompes, des parois absorbantes à basse température constituent des fuites fictives potentielles.

g) Bouchages

Considérons maintenant la deuxième anomalie de fonctionnement : le bouchage d'un petit capillaire qui est chose fréquente si l'appareil est mal nettoyé à la construction, mal entretenu et si les procédures de mise en route et d'arrêt que j'ai décrites précédemment ne sont pas suivies.

Les causes des bouchages sont les suivantes :

- bouchages par des poussières : limaille, copeaux, pellicules d'oxyde ou d'hydrocarbonate, résidus de soudures et de décapants,... Les bouchages causés par des particules solides se produisent à température ambiante.

- bouchages par les aérosols d'huile au refoulement de la pompe à palettes et à l'aspiration du booster (lors de sa mise en route). L'huile est une cause permanente de pollution des circuits. De l'eau peut également être présente en certaine quantité, en particulier dans l'huile des pompes mécaniques. Ces bouchages se produisent en général un peu en dessous de la température ambiante.

- bouchages par des gaz solidifiés. Ces bouchages se produisent entre la température de l'azote liquide et celle de l'hélium liquide.

- Les remèdes à ces différents types de bouchage sont les suivants :

- un nettoyage soigné des circuits à l'aide de solvants, décapants et passivants.

- l'utilisation de tubes capillaires dégraissés
- l'utilisation de filtres en substances poreuses à faible seuil d'arrêt, de filtres à choc et de chambres de décantation pour les aérosols d'huile.
- la précaution d'utiliser des débits gazeux faibles, surtout en regime transitoire (par exemple lors d'une remise sous pression atmosphérique) et des pressions basses sustentant peu les aérosols.
- la gradation des diamètres des capillaires.
- l'utilisation d'éléments difficilement colmatables, comme les fuites calibrées en alumine compactée (51)
- la purification des gaz circulés au moyen de pièges à charbon actif.
- des purges soignées à l'hélium gazeux après chaque réouverture du circuit scellé.
- une étanchéîté rigoureuse des circuits.
- l'observation des procédures de mise en route et d'arrêt.

Moyennant l'application de ces quelques règles, il est aisé d'éviter les bouchages. Le problème du bouchage d'un réfrigérateur à dissolution, est beaucoup moins sérieux que celui d'un liquéfacteur d'hélium dans lequel les débits et les pressions sont beaucoup plus élevées; c'est la situation inverse de celle qui prévaut pour l'étanchéîté.

2.43. INSTABILITE DE FONCTIONNEMENT D'UN REFRIGERATEUR

Certaines observations montrent que la stabilité naturelle d'un réfrigérateur à dissolution n'est pas garantie (52)(53)(54). Même en cas de stabilité, la réponse à une perturbation thermique en échelon révèle un système thermohydrodynamique complexe. Ces instabilités peuvent avoir les causes avérées suivantes :
- l'existence d'une fuite de gaz vers le vide d'isolement peut engendrer des oscillations thermiques de relaxation accompagnées du piégeage et dépiégeage du gaz par les parois dont la température varie ;
- le circuit de réalimentation en hélium-3 concentré liquide peut charrier soit des bulles de gaz (54), soit des index de phase diluée, ce qui peut contrarier le démarrage et perturber la régularité de fonctionnement du réfrigérateur;
- le système des échangeurs à contre-courant est, comme l'a signalé

B. Neganov [53], un système bouclé. La période d'oscillation est de l'ordre du temps de passage de l'hélium-3 concentré dans une section de l'échangeur à contre-courant. Dans notre appareil, ce temps est particulièrement court, de l'ordre de 60 s, à cause du faible volume mort des échangeurs. Des phénomènes oscillatoires de cette nature ont été observés pour $T_M \sim 200$ mK.

Par contre, des expériences effectuées en collaboration avec D. Le Fur [55] ont montré qu'aucune instabilité convective n'existe dans les situations géométriques et thermiques rencontrées dans les réfrigérateurs à dissolution.

Des oscillations thermoacoustiques [56] pourraient, en principe, se produire entre le distillateur et une partie plus froide de l'appareil. Leur période serait de l'ordre de la seconde, suivant les observations de H. London et coll. [57] dans une jauge de pression osmotique; mais elles ne se sont jamais manifestées sur notre réfrigérateur.

REFERENCES

(1) E. Varoquaux, Etude des propriétés d'équilibre des solutions isotopiques de l'hélium à très basses températures. Thèse de Docteur ès Sciences, Orsay (1971).

(2) H.M. Rosenberg, Low temperature solid state physics, Clarendon Press, Oxford (1963) 127.

(3) R.B. Scott, Cryogenic Engineering, D. van Nostrand C°.Inc.N.Y. (1959) 147...

(4) A.H. Beck Handbook of vacuum physics vol. 3 Prt 4-223,
T.H. Moss, C.F. Kellers, A.J. Beardon, Rev. Scien. Inst. 34, 1267 (1963).

(5) P. Pièjus et E.J.A. Varoquaux, Rapport DRME 68-34750 du 15.07.70 et article en préparation.

(6) E.J.A. Varoquaux , C.R. Acad. Sci. Paris, 265 B, 1372 (1967)

(7) L.E. Delong, O.G. Symko, J.C. Wheatley,
Rev. Sci. Inst. 42 , 147 (1971).

(8) M. Gauthier, E.J.A. Varoquaux, Cryogenics à paraître,

(9) R.B. Scott, loc cit p. 319 .

(10) R. Radebaugh NBS, Technical Note 362 (déc. 1967) p. 85 .

(11) M.G. Ribaud Mémorial des sciences physiques fascicule XL Gauthier Villars, Paris (1939) p. 40.

(12) J.G. Dount, K. Mendelssohn, Proc. Roy. Soc. (London)
A 170 , 423 (1939) et A.170 439 (1939)

(13) L.C. Jackson, L.G. Grimes, Phil. Mag. Suppl. 7 435 (1958)

(14) K.R. Atkins, Liquid Hélium. Cambridge University Press (1959) Cha. 7.

(15) J.C. Wheatley, R.E. Rapp, R.T. Johnson, J. Low Temp. Phys. 4, I (1971).

(16) B. Smith, H.A. Boorse, Phys. Rev. 98 328, 99 346, 99 358, 99 367 (1955).

(17) R. Bowers, K. Mendelssohn, Proc. Phys. Soc. (London) 63 A 1318 (1950)

(18) C.J. Dythler, G.L. Pollack, Phys. Rev. 3A , 191 (1971)

(19) K.L. Chopra, J.B. Brown, Phys. Rev. 107 915 (1957)

(20) A.C. Hann, L.C. Jackson, Proc. Roy. Soc. (London) A240 243 (1957)

(21) C.C. Matheson, J. Tilley, Proc. LT IX Colombus p. 210 (1964)

(22) D.J. Martin, K. Mendelssohn, J. Low Temp. Phys. 5 211 (1971)
C.F. Mate, R. Harris Lowe, J.G. Daunt, Proc. LT IX Colombus p. 206 (1964).

(23) C.J.N. Van den Meijdenberg, K.W. Taconis, C. Le Pair Physica 27 117 (1961)

(24) E. Varoquaux, Rapport DRME, n° 66-34-409 du 4.12.1968 p. 141.

(25) P. Roubeau, D. Lefur, E. Varoquaux, Proc. ICEC III Berlin 1970 p. 315.

(26) F.E. Hoare, L.C. Jackson, N. Kurti, Experimental cryophysics Butterworths (London) 1961 p. 349.

(27) S. Dushman , Scientific Foundation of vacuum technique J. Wiley ; New-York (1949)

(28) E.H. Kennard, Kinetic Theory of gases Mc Graw-Hill N.Y. p.147 (1938)

(29) E.W. Belker, R. Misenta, Zeit für Physik Bd 140, 535 (1955)

(30) J. de Boer, E.G.D. Cohen, Physica XVII n° 11-12, 993 (1951)

(31) W.H. Keesom, Hélium Elsevier, Princeton N.J. (1942)

(32) G.P. Brown, A. Dinardo, G.K. Cheng, T.K. Sherwood J. Appl. Phys. 17 , 802 (1946)

(33) A.C. Ghozlan, E.J.A. Varoquaux, Phys. Lett. 30A , 426 (1969)
A.C. Ghozlan, J. de physique, T. 33 , 415 (1972).

(34) R.W. Webeler, G. Allen, Phys. Lett. 29A , 93 (1969).

(35) M.A. Black, H.E. Hall, K. Thompson, J. Phys. C. Solid St. Phys. 4 , 129 (1971).
D.J. Fisk, H.E. Hall, Proc. LT 13, Boulder (1972) à paraître .

(36) M.P. Bertinat, D.S. Betts, D.F. Brewer, R. Lucking Proc. LT 13, Boulder (1972) à paraître.

(37) J.T. Tough, Communication privée à E. Varoquaux.

(38) A.O. Nier, C.M. Stevens, A. Hustrulid, T.A. Abbott, J. Appl. Phys. 18 , 30 (1947).

(39) L. Prandtl, Guide à travers la mécanique des fluides (Dunod - Paris - 1952) p. 276.

(40) A.V. Luikov, Heat and mass transfert in capillary porous bodies. Pergamon Press - Oxford - 1966.

(41) S. Dushman, loc. cit. p. 220.

(42) R. Defay, I. Prigogine, Tension superficielle et adsorption (Desoer - Liège - 1951).

(43) N.P. Danivola, A.J. Shal'nikov, Cryogenics 8 , 322 (1968).

(44) S. Dushman, loc. cit. p. 421.

(45) H. Keesom, loc. cit. p. 126

(46) G.A. Cook, Argon, Helium, and the rare gases.
Interscience Pub. New-York, 1961, Vol. 1 p. 42.

(47) T.L. Hill, Statistical Mechanics - Mc Graw Hill
New-York (1956) p. 424.

(48) M.G. Kaganer, Thermal insulation in Cryogenic Engineering.
Israël Program for Scientific Translations - Jerusalem
(1969)p. 178.

(49) G. Mongodin, J. Delafosse, H. Deterck, C. Guilbard, Y. Benet
Organisation et méthodes mises en oeuvre pour l'étanchéité
de l'usine de séparation isotopique de Pierrelatte.
Edition spéciale extraite du n° 108 de la revue "Le Vide"
(1964).

L. Maurice
Pratique du contrôle d'étanchéité à l'hélium "Le vide" numéro
spécial, supplément au n° 136 (1968).

R.J. Roehrs
Mater. Evaluation 26 , 236 (1968).

R.B. Scott
Cryogenic Engineering D. Van Nostrand N.Y. (1969) p. 192.

(50) A.H. Beck, ed., Handbook of Vacuum Physics, Vol. 3, Part. 4 p. 223
Pergamon Press Ltd. (1964).

(51) M. Gauthier, E.J-A. Varoquaux, Cryogenics à paraître.

(52) H.E. Hall, P.J. Ford et K. Thompson, Cryogenics, 6, (1966), p. 80.

(53) B.S. Neganov, N.S. Borisov et N.Y. Libourg,
J.E.T.P., 23, (1966), p. 959.

(54) J.C. Wheatley, R.E. Rapp et R.T. Johnson, J. Low T. Phys., 4, (1971) p.1

(55) D. Le Fur et E.J.-A. Varoquaux (non publié)

(56) A. Wexler, in Experimental Cryophysics, Ed. E.E. Hoare, L.C. Jackson
et N. Kurti, Butterworths (London, 1961), p. 156.

(57) H. London, D. Phillips et G.P. Thomas, Proc. L.T., XI,
Saint-Andrews, (1968), p. 649.

Chapitre 3

PERFORMANCES ET RESULTATS

3.1. INTRODUCTION

Dans les deux précédents chapitres, nous avons décrit les matériaux ainsi que la construction du réfrigérateur à dilution réalisé à l'Institut d'Electronique Fondamentale. Le présent chapitre a pour but d'exposer les résultats obtenus avec cet appareil.

Les différentes mesures effectuées nécessitent la connaissance des températures atteintes. Ces températures sont relevées grâce à des résistances au carbone Speer 220 Ω ou 470 Ω étalonnées. La mesure de leur résistance est effectuée à l'aide d'un pont faible puissance réalisé à l'In l'Institut d'Electronique Fondamentale (1).

Chaque résistance est thermalisée grâce à deux fils de cuivre isolés soudés sur chacune des sorties de la résistance. Ces fils sont enroulés en spirale autour du corps de la résistance, l'un sur l'autre. L'une des sorties de la résistance est soudée sur des petits colliers vissés autour des tubes capillaires, l'autre étant reliée au pont de mesure à l'aide de fils de Constantan de faible diamètre (Ø 0,05 mm).

La courbe d'étalonnage des résistances représentée sur le schéma n° 36 a été établie à l'aide d'un thermomètre à résonance magnétique nucléaire, également mis au point à Orsay (2).

Le fait de pouvoir mesurer ainsi de façon simple la température des diverses parties du réfrigérateur permet de suivre le fonctionnement de l'appareil.

Je vais décrire dans ce chapitre les divers facteurs qui peuvent influer sur le fonctionnement du réfrigérateur, ainsi que le fonctionnement réel observé. Les facteurs qui peuvent influer sur le fonctionnement sont les suivants :

- Isolation thermique de la partie froide
- Perte en charge sur le côté dilué de la partie froide,

Les trois paramètres décrivant le fonctionnement réel du réfrigérateur sont les suivants :

- courbe de puissance du réfrigérateur
- bilan thermique d'un échangeur
- courbe de descente en température du réfrigérateur.

3.2. ISOLATION THERMIQUE DE LA PARTIE FROIDE

Les pertes thermiques limitent les performances du réfrigérateur. Dans l'appareil réalisé ces pertes ont deux origines :

- soit la conduction par les supports métalliques de la partie froide
- soit la conduction par la pression résiduelle dans le vide d'isolement.

Les pertes par rayonnement sont très faibles à très basses températures. L'énergie dissipée par les vibrations mécaniques dans la partie froide ne paraît pas jouer un rôle important comme nous l'avons vérifié directement. Ceci est dû à la bonne rigidité mécanique du berceau de montage. De plus, l'ensemble des vases dewar est suspendu élastiquement par l'intermédiaire de blocs en caoutchouc, et des soufflets métalliques sont interposés dans les lignes de pompage de manière à filtrer les vibrations mécaniques.

3.21. CONDUCTION PAR LES SUPPORTS

La conductibilité thermique de l'acier inoxydable utilisé (Z2 CND 17-12) a été mesurée à basses températures, aucune valeur n'étant donnée dans la littérature pour ce type d'acier. Les résultats obtenus m'ont permis de comparer la conductibilité de celui-ci avec celle d'autres matériaux tels que le graphite et l'alumine.

a) Mesure de conductibilité de l'acier inoxydable Z2 CND 17-12

Le dispositif utilisé est représenté sur le schéma n° 26. Il comporte un tube en acier inoxydable Z2 CND 17-12 de diamètre 2x3 mm brasé sur un socle en cuivre. Ce socle est maintenu sur la chambre de mélange (1er modèle en cuivre). En bas du tube est placée une résistance 1 MΩ destinée à chauffer le tube. Une résistance de mesure de température est accrochée sur le tube. Elle est reliée au pont de mesure par un fil de Constantan de diamètre 1/10 mm dont la longueur est de 18 cm jusqu'à la chambre de mélange où il est thermalisé. La longueur de tube entre la résistance de mesure et la chambre de mélange est de 10 mm.

Les résultats obtenus sont reportés sur le tableau suivant avec :

T_o température de la chambre de mélange

T température de la résistance

C puissance appliquée sur le tube.

T_o m°K	C mg/s	T °K	T_o	C	T	T_o	C	T
34 m°K	0	42	80	0	85	150	0	160
	0,067	44		0,067	86		0,067	165
	0,133	48,5		0,133	90		0,267	170
	0,2	53		0,260	96		0,6	175
	0,267	56		0,615	104		1,067	185
	0,333	61		1,08	122			
						224	0	225
40 m°K	0	48	110	0	114		0,075	230
	0,067	51		0,067	116		0,147	231
	0,133	55		0,133	118		0,264	232
	0,6	80		0,267	122		0,60	235
				0,6	130		1,06	242
63 m°K	0	67		1,067	147			
	0,067	70						
	0,133	73,5						
	0,2	77						
	0,267	80						

L'ensemble de ces résultats est également représenté figure n° 27.

L'énergie totale Q° est telle que :

$$\frac{Q^\circ}{S} = \int_{T_o}^{T} K_\ell (T) \frac{dT}{d\ell}$$

K_ℓ étant la conductibilité thermique cherchée. S la section de passage dans le métal et l la longueur. $Q = C + p$, p étant les pertes et C la puissance électrique fournie. Supposons que la variation en température de K_ℓ soit : $K_\ell = K T^{\alpha - 1}$. Il s'ensuit que

$$\frac{Q^\circ}{S} = \frac{K}{\ell} \left[\frac{T^\alpha}{\alpha} \right]_{T_o}^{T} = \frac{K}{\ell \alpha} (T^\alpha - T_o^\alpha)$$

Dans les mesures effectuées la température T_o ne varie pas. Par contre sur le schéma n° 27 on remarque que T est une fonction linéaire de C donc de Q° car les pertes sont constantes : $T = a\, Q^\circ + T_o$
où Q' est la pente des droites obtenues. On a donc

$$\frac{Q'}{S} = \frac{K}{\ell \alpha} \left[(a\, Q^\circ + T_o)^\alpha - T_o^\alpha \right]$$

$$\frac{Q^\circ}{S} = \frac{K T_o^\alpha}{\ell \alpha} \left[\left(\frac{a}{T_o} Q^\circ + 1 \right)^\alpha - 1 \right]$$

Q° étant petit nous faisons un développement limité au 1er ordre

$$\frac{Q^\circ}{S} = Q^\circ \frac{K T_o^{\alpha - 1}}{\ell} a$$

or $K T_o^{\alpha - 1} = K_\ell (T_o)$ d'où $K_\ell (T_o) = \frac{L}{Sa}$

$K_\ell (T)$ représenté figure n° 28 a donc pour forme $K_\ell (T) = 7\ 100\ T$.

La conductibilité thermique du constantan est de $K_{\ell c}(T) = 20\ 000\ T$, celle de l'inox est $K_{\ell i}(T) = 7\ 100\ T$. Comparons les quantités de chaleur qui passent dans l'inox et dans le constantan (Q°_i et Q°_c) dans la géométrie que nous avons adoptée pour notre expérience :

$$\frac{Q^\circ_c}{Q^\circ_i} = \frac{K_{\ell c} S_c \times l_i}{K_{\ell i} S_i \times l_c} = \frac{20\ 000\ T \times 8 \times 10^{-5} \times 1}{7\ 100\ T \times 3 \times 10^{-2} \times 18}$$

$$\frac{Q^\circ_c}{Q^\circ_i} = 4 \times 10^{-4}$$

Le constantan ne constitue donc pas un chemin parallèle gênant pour la mesure.

En tout état de cause, la précision de la mesure serait augmentée si l'on utilisait un tube d'acier inoxydable de plus forte section, ce qui permettrait d'augmenter la puissance appliquée rendant ainsi les pertes tout à fait négligeables et permettant un meilleur étalonnage de la résistance de mesure de température disposée sur le tube. La conductibilité thermique de l'acier inoxydable Z2 CND 17-12 (norme américaine 316 L) est donc $K_t(T) = 7100\ T$. Or cet acier a été utilisé pour la réalisation des supports de l'appareil. Nous allons donc comparer l'acier inoxydable à d'autres matériaux pouvant être utilisés, le graphite et l'alumine.

b) Comparaison des conductibilités thermiques de l'acier, du graphite et de l'alumine.

Les pertes par conductibilité thermique sont de la forme

$$dQ^\circ = K_t(T)\ S\ \frac{dT}{dl}$$

Or pour une tenue mécanique comparable S est fonction de l'inverse de la résistance à la traction R des matériaux. Pour comparer les matériaux il suffit donc de comparer $K_t/R\ (T)$.

Les résultats de cette comparaison sont consignés dans le tableau suivant.

	K_t erg/s $cm^2{}^\circ K$	R baryes	K/R
acier inoxydable Z2CND 17-12	$7\ 100\ T$	65×10^6	$1{,}09\ 10^{-4}\ T$
Z2 graphite	$49\ T^{1,86}$ (3)	2×10^6	$2{,}45 \times 10^{-5} T^{1,86}$
alumine	$5\ 000\ T^3$ (4)	38×10^6	$1{,}315 \times 10^{-4} T^3$

Ces résultats sont reportés sur le schéma n° 29.

On peut en conclure qu'entre 1 K et 0,25 K c'est le graphite qui est le moins bon conducteur, mais qu'au dessous de 0,25 K l'alumine est meilleure. Mais en tout état de cause, l'emploi de l'acier inoxydable qui n'entraîne pas, comme nous allons le voir, de pertes suffisamment importantes pour gêner le fonctionnement du réfrigérateur a été préféré du fait de sa facilité d'emploi (possibilité de soudures) comparativement aux deux autres produits.

c) Pertes thermiques dues aux supports

Le support est constitué d'abord de 3 tubes en acier inoxydable Z2CND 17-12 de section totale A = 4,2 mm^2 et de longueur = 7 cm. Ils maintiennent les différents échangeurs et sont en contact thermique avec le bouilleur. Le bouilleur est à une température de 550 m K. L'extrémité froide du support est à 100 m K environ. La conductibilité thermique de l'acier inoxydable étant 7 100 T, la quantité de chaleur amenée par les supports sur l'échangeur est de :

$$Q^\circ = \frac{A \int_{100}^{550} 7\ 100\ T\ dT}{1} = 1{,}7 \text{ erg/sec.}$$

Cette quantité est négligeable comparativement à la quantité de chaleur échangée dans l'échangeur (cf. paragraphe 3.5).

Ces trois tubes se prolongent ensuite sur 15 cm pour soutenir la chambre de mélange qui est à 30 mK. La quantité de chaleur amenée à la chambre de mélange est de 0,1 erg/sec.

3.22. PRESSION RESIDUELLE TOLERABLE DANS LE VIDE D'ISOLEMENT.

La pression résiduelle d'hélium dans le vide d'isolement contribue de deux manières différentes à la perte thermique

- par conduction thermique du gaz
- par adsorption sur les parois.

Bien que ces deux mécanismes aient fait l'objet de nombreuses études (5) le calcul de leur contribution à l'échange thermique ne peut être effectué que d'une manière assez grossière.

a) Conduction gazeuse

La puissance thermique transmise par un gaz en régime moléculaire entre deux parois en regard à des températures différentes T_1 et T_2 est donnée par la formule suivante (5)

$$Q^\circ = \frac{A}{2} \frac{\alpha_1 \alpha_2}{\alpha_1 + \alpha_2 - \alpha_1 \alpha_2} \frac{\gamma + 1}{\gamma - 1} \sqrt{\frac{R}{2\pi M}} \frac{P}{\sqrt{T}} (T_1 - T_2)$$

A la surface des parois

α_1, α_2 coefficients d'accomodations

γ rapport des chaleurs spécifiques Cp/Cv du gaz

R constante des gaz

P pression du gaz, lue à la température T

M poids moléculaire du gaz.

Cette formule n'est valable que pour des différences de températures T_1-T_2 petites devant T_1 et T_2, et en négligeant les effets de géométrie. Les calculs plus exacts (6) montrent que l'erreur ainsi commise est faible. Le coefficient d'accomodation mis en jeu est celui décrivant la réflection des atomes à la paroi :

$$\alpha = \frac{E_i - E_r}{E_i - E_p}$$

E_i énergie de la particule incidente

E_r énergie de la particule réfléchie

E_p énergie qu'aurait la particule si elle avait parfaitement accomodé son énergie à la température T_p de la paroi.

Pour des parois et des gaz usuels, les coefficients d'accomodation α ont une valeur comprise entre 0,3 et 1. Il est habituel de considérer que α tend vers 1 lorsque la température s'approche de la température critique du gaz. Toutefois la valeur de α la plus élevée qui ait été mesurée pour l'hélium n'est que de 0,72 (7) entre 4 et 1,5 Kelvin.

Je prendrai $\alpha_1 = \alpha_2 = 0,72$ dans l'application numérique qui va suivre. Le résultat trouvé serait de toute façon le même si α_2 avait été pris égal à 1. La puissance thermique transmise par de l'hélium raréfié entre deux parois de surface A présentant une différence de température de 4 Kelvin est donnée par :

$$Q^{\circ} = 610 \quad A \; P_A \quad \text{erg/sec}$$

où P_A est la pression mesurée à la température ambiante (20°C) et exprimée en barye.

La surface externe de la chambre de mélange étant de l'ordre de 100 cm^2, la pression correspondant à une perte thermique de 1 erg/sec est de l'ordre de 10^{-8} Torr.

b) Chaleur amenée par adsorption

Un atome d'hélium du gaz résiduel heurtant la paroi peut s'y fixer. S'il est réémis au bout d'un temps bref , le processus est celui de la réflection à la paroi, décrit par le coefficient d'accomodation α . L'apport thermique d'une réflection de ce type provient de la différence des énergies cinétiques incidente et réfléchie. Cet apport a été évalué au paragraphe précédent.

Si par contre, l'atome n'est pas réémis mais reste sur la paroi,

il cède à celle-ci son énergie cinétique et l'énergie d'adsorption. Il en résulte un apport important de chaleur. Cet apport se calcule à partir de la connaissance

- du flux γ_i de particules incidentes à la pression P_i et la température T_i

$$\gamma_i = \frac{P_i}{\sqrt{2 \pi m k_B T_i}}$$

- de la probabilité de piégeage, qu'en l'absence de données plus précises, je prendrai égale à 1.
- de la valeur de la chaleur d'adsorption L_{ad} qui est d'environ J/Mole pour la première couche et de 150 J/Mole pour la seconde.

En remarquant que la quantité $P_i/\sqrt{T_i}$ est identique à la quantité équivalente mesurée à l'ambiante $P_A/\sqrt{T_A}$, nous obtenons pour la puissance thermique amenée par adsorption l'expression suivante (N_A, nombre d'Avogadro)

$$Q^c = \gamma_i \frac{A L_{ad}}{N_A} = \frac{A L_{ad} P_A}{\sqrt{2 \pi M R T_A}}$$

$$= 5 \times 10^3 A P_A \quad \text{erg/sec}$$

Le processus d'adsorption ramène, à pression égale, huit fois plus de chaleur que la conduction gazeuse et constitue ainsi le mécanisme dominant aux pressions inférieures à la pression d'équilibre d'adsorption à la température de la paroi.

La pression en-dessous de laquelle la fuite thermique est inférieure à 1 erg/sec pour une surface de 100 cm^2 est :

$$P_A = 1{,}5 \quad 10^{-9} \text{ Torr}$$

La température de condensation de l'hélium-4 correspondant à une telle pression est 0,33 K. Cette température marque la transition entre la zone des très basses températures où l'adsorption domine et la zone où la conduction gazeuse joue le rôle principal.

Ainsi une bonne isolation thermique de la chambre de mélange exige un vide d'une très bonne qualité. En l'absence de fuite, le vide est rapidement amélioré par cryopompage. En effet la surface de la chambre de mélange, d'une aire de 100 cm^2 peut, à très basse température, piéger

jusqu'à une couche monoatomique complète. En comptant que chaque atome adsorbé occupe environ $(3,5\ \text{Å})^2 \simeq 10^{-15}\ \text{cm}^2$, il peut se piéger environ 10^{17} atomes. Ces atomes répartis dans l'enceinte du vide d'isolement d'un volume de 4000 cm^3 à la température de 4,2 K créent une pression lue à l'ambiante de 10^{-4} Torr. Il est donc souhaitable que le gaz d'échange soit pompé jusqu'à une pression inférieure à cette valeur avant que le démarrage de la partie froide ne soit entrepris. Dans le cas contraire, la paroi froide se tapisse de plus d'une couche d'atomes. Il est alors vraisemblable que l'hélium adsorbé est très mobile, et se déplace vers les régions chaudes où il est évaporé à nouveau.

3.3. INFLUENCE DE LA PERTE EN CHARGE DU COTE DILUE

Comme je l'ai mentionné au chapitre 2 lors de la description détaillée de la partie mélange, deux ensembles d'échangeurs ont été mis en place successivement. La raison de ce changement est que les pertes en charge du premier jeu d'échangeurs se sont révélées trop importantes. Dans ce paragraphe je vais décrire d'abord le cycle d'expériences préliminaires qui a permis de déterminer l'influence d'une perte en charge trop importante du côté dilué, puis je comparerai les résultats expérimentaux aux prévisions théoriques.

La conclusion de cette comparaison est que la perte en charge en régime laminaire due à la seule viscosité de l'hélium 3 en solution n'est pas suffisante pour rendre compte des phénomènes observés.

3.31. ANALYSE EXPERIMENTALE DE LA PERTE EN CHARGE

Cette analyse a été effectuée sur le premier petit échangeur (cf. chapitre 2.32 e). Celui-ci était monté entre la chambre de mélange et l'échangeur réparti "serpentin".

Au cours de cette expérience ont été relevés :

- la température T de la chambre de mélange
- la température T_o du bouilleur
- le débit total $\mathring{n}$
- la concentration x en hélium 3

A l'aide de ces mesures on peut déterminer :

- le débit $\mathring{n}_3$ en hélium 3 : $\mathring{n}_3 = x\ \mathring{n}$
- le débit $\mathring{n}_4$ en hélium 4 : $\mathring{n}_4 = \mathring{n} - \mathring{n}_3 - 5\ \mu$moles évaporé dans le bouilleur.

(les 5 μmoles correspondent aux pertes en hélium 4 dues au film (cf. chapitre 2))

- x_v la concentration réelle de la vapeur en hélium 3 dans le bouilleur

$$x_v = \frac{\mathring{n}_3}{\mathring{n}_4 + \mathring{n}_3}$$

La concentration réelle de la vapeur en hélium 3 est liée aux pressions partielles P_3 de l'hélium 3 et P_4 de l'hélium 4 par :

$$x_v = \frac{P_3}{P_3 + P_4}$$

D'après la loi de Raoult nous avons

$$P_{40} - P_4 = x_\ell \, P_{40} \qquad (8)$$

P_{40} étant la pression de vapeur saturante de l'hélium 4 au-dessus du bouilleur et x_ℓ la concentration en hélium 3 du liquide. Nous avons donc $P_4 = P_{40}(1 - x_\ell)$, P_{40} est fonction de la température Tb (9) x_ℓ est très petit comme nous le verrons. On peut donc assimiler P_4 à P_{40} :

$$x_v = \frac{P_3}{P_3 + P_{40}}$$

d'où

$$P_3 = \frac{x_v}{1 - x_v} P_{40}$$

De P_3 on tire la concentration x_ℓ du liquide en hélium 3 par la formule

$$x_\ell = \frac{V_{40} \; P_3}{RT_b \; e^{E_{o3}/RT_b}} \left(\frac{m_3^*}{m_3} \right)^{3/2} \qquad (10)$$

où V_{40} est le volume molaire de l'hélium 4 à 0 K, m_3^* la masse effective d'un atome d'hélium 3 en solution, m_3 la masse d'un atome d'hélium 3, E_{o3} énergie de liaison de l'hélium 3 au bain d'hélium 4, R la constante des gaz parfaits. Les valeurs numériques adoptées sont les suivantes:

$$\frac{m_3^*}{m_3} = 2{,}3 \;, \qquad E_{o3} = -21{,}5 \text{ J/mole} \qquad V_{40} = 27{,}58 \text{ cm}^3$$

La pression osmotique Π_b dans le bouilleur est donnée alors par la formule de Van'T Hoff

$$\Pi_b = x_\ell \frac{RT}{V_{40}}$$

La pression osmotique Π_c dans la chambre de mélange est calculée par la formule

$$\Pi_c = 21{,}5 + 1000 \, T^2 \qquad [\text{mb}] \qquad (11)$$

La perte en charge totale sera donc $\Pi_c - \Pi_b$

L'ensemble des résultats est représenté sur le tableau suivant. La perte en charge moyenne est donc de 28 mb. Cette perte ne peut s'expliquer par l'écoulement classique du dilué dans les tubes comme nous allons le voir maintenant.

3.32. VITESSE D'ECOULEMENT ET VITESSE CRITIQUE DU SUPERFLUIDE

Comme indiqué précédemment au § 2.32 e, l'impédance à l'écoulement du petit échangeur n° 1 est de 5,6 $10^9 cm^{-3}$, l'impédance du serpentin 1,2 x 10^9 cm^{-3}. Les pertes en charge correspondantes sont pour le débit nominal de 80 µmoles de 12,5 mb. Ces pertes en charge se traduisent par un abaissement de 50% de la concentration en hélium 3 dans le distillateur. L'abaissement réellement observé par analyse de la concentration de la vapeur est bien supérieur puisque la concentration de l'hélium 3 dans le liquide qui devrait être de l'ordre de 1% tombe à des valeurs de l'ordre de 10^{-4}.

Tirant la leçon de ce cycle d'expériences,nous avons remplacé le petit échangeur par le type n° 2, puis adjoint successivement les gros échangeurs 1 et 2, augmentant donc à nouveau la perte en charge du côté dilué. Dans cette dernière version, le titre de la vapeur pompée est de 92% pour un débit de 45 µmole/sec. Ce taux de rectification est celui qui correspond au taux réel très voisin de 100% dégradé par le film superfluide dont le débit est d'environ 5 µmole/sec : cette situation peut être considérée comme satisfaisante.

Signalons néanmoins dès à présent que, dans la même configuration, le titre en hélium tombe à 55% pour un débit de 66 µmole/sec, ce qui se traduit par une diminution du débit réel en hélium-3. Comme on le verra plus loin, cette constatation suggère qu'un phénomène nouveau apparaît à partir d'un certain seuil. Ce phénomène est la création de lignes de vortex dans le superfluide lorsque la vitesse critique de superfluidité est dépassée (12)

Etudions en effet les vitesses d'écoulement dans les différents points de la partie froide.

La vitesse moyenne v des atomes le long des filets de l'écoulement est le débit volumétrique $\dot{V}$ divisé par la section de passage σ. Le débit volumétrique est lié au volume molaire et au débit molaire par

T m°K	Tb m°K	R µmole/s	x	R_3	n_4^o	x_v	P_{40} baryes	P_3 baryes	x_2 x 10^{-4}	Π_b baryes	Π_c baryes	$\Pi_c - \Pi_b$ mb
735	780	70,8	27,2	19,26	46,54	29,27	11,97	4,95	2,015	474	26 902	26,4
69	720	58,8	30	17,64	36,16	32,79	3,99	1,95	0,816	177	26 261	26
64	640	43,8	38,4	16,82	21,98	43,35	0,80	0,61	0,624	120	25 596	25,5
64	640	43,8	49	21,46	17,34	55,31	0,80	0,99	1,014	196	25 596	25,3
62	640	40,8	53,5	21,83	13,97	60,98	0,80	1,25	1,280	247	25 344	25,1
107	550	31,8	58	18,44	8,36	68,80	0,12	0,26	0,60C	99	32 949	32,8
100	560	31,8	63	20,03	6,77	74,74	0,133	0,39	0,813	137	31 500	31,4
64	560	44,5	47,5	21,14	18,36	53,52	0,133	0,15	0,313	53	25 596	25,5
70	610	42,2	56,7	23,94	13,26	64,35	0,44	0,79	1,035	190	26 400	26,2
80	610	42,2	58,2	24,56	12,64	66,02	0,44	0,85	1,114	205	27 900	27,7
93	610	47,6	60,5	28,80	13,80	67,60	0,44	0,92	1,206	222	30 149	29,9
120	580	47,6	63,6	30,27	12,33	71,06	0,23	0,56	0,961	168	35 900	35,7

$$\overset{c}{V} = \overset{o}{n}\, V_{mol} \simeq \overset{o}{n}\, V_{40}\, \frac{1 + \alpha x}{x}$$

V_{40} , volume molaire de l'hélium 4 (27,6 cm^3)

$\alpha = 0{,}286$

x concentration molaire

Pour simplifier, je suppose comme plus haut que la pression osmotique est donnée approximativement par la loi de Van'T Hoff

$$\Pi = \frac{x\, RT}{V_{40}}$$

ce qui conduit, pour le débit volumétrique, à la formule suivante, au premier ordre en x :

$$\overset{o}{V} = \frac{\overset{o}{n}\, RT}{\Pi}$$

La valeur de la pression osmotique en un point donné de la colonne diluée est fixée par la pression osmotique saturante à laquelle s'effectue la dissolution $\Pi_{sat}(Tc)$ et la perte en charge $\Delta\Pi$:

$$\Delta\Pi = \eta\, Z\, \overset{o}{V} = \eta Z \frac{\overset{o}{n}\, RT}{\Pi}$$

soit, en négligeant les variations de température

$$\Pi^2 = \Pi^2_{sat}\,(Tc) - 2\,\eta\, Z\, \overset{o}{n}\, RT$$

Appliquons cette formule à la situation décrite au paragraphe précédent avec les valeurs numériques suivantes :

$Z = 5{,}6\ 10^9\ cm^{-3}$

$\overset{o}{n} = 25\ \mu moles/sec$

$T = 0{,}1\ K$

$\eta = 70\ \mu p$

$\Pi_{sat} = 25\ mb$

Il vient $\Pi = 21{,}5$ mb , ce qui confirme que la valeur de l'impédance à l'écoulement Z, bien qu'élevée, est encore supportable en principe.

Venons-en au problème de la vitesse critique dans le modèle à deux fluides, la composante normale étant constituée par l'hélium 3 de densité ρ_n et de vitesse v_n, et la composante superfluide, de densité ρ_s et de vitesse v_s. La densité totale du fluide est $\rho = \rho_s + \rho_n$ ρ_n peut être négligé devant ρ_s et ρ qui seront pris égaux à la densité de l'hélium 4 pur.

Si nous négligeons le transport effectif d'hélium 4 dans l'équation de conservation de la masse et ne conservons qu'un débit d'hélium-3 pur, il vient $\rho_s v_s + \rho_n v_n = \rho_3 v_n$

ρ_3 étant la densité réelle de l'hélium 3 en solution qui se différencie de ρ_n par l'absence du facteur de masse effective ($\rho_n \simeq 2{,}3\ \rho_3$). La vitesse de rétrodiffusion du superfluide est donc donnée par :

$$v_s = \frac{\rho_3 - \rho_n}{\rho_s} v_n \simeq \frac{m_3^* - m_3}{m_4} \times v_n$$

m_3^*, m_3 et m_4 sont les masses effective et réelle de l'hélium 3 et la masse réelle de l'hélium 4. Cette équation traduit le mouvement du superfluide du distillateur à la chambre de mélange provoqué par celui de l'hélium 3 voyageant en sens inverse avec une masse effective (donc entraînant de l'hélium 4 dans son mouvement).

Il est connu (13) que le mouvement du superfluide s'effectue sans viscosité tant que sa vitesse de déplacement par rapport aux parois d'un tube de diamètre d est inférieur à une certaine valeur critique, donnée par la relation

$$v_{crit} \sim \frac{4\hbar}{m_4 d} L_n \left(\frac{d}{3a_o}\right)$$

a_o, diamètre du coeur d'un vortex ($\sim 1{,}2$ Å)

$\hbar$, constante de Planck $1.0545 \quad 10^{-27}$ erg/sec.

A cette vitesse critique du superfluide correspond une vitesse critique de l'hélium-3 :

$$v_{3crit} \sim \frac{4\hbar}{(m_3^* - m_3)\, dx} L_n \left(\frac{d}{3a_o}\right)$$

soit un débit volumétrique critique

$$\dot{V}_{crit} \sim \frac{4\hbar\sigma}{(m_3^* - m_3)\, xd} L_n \left(\frac{d}{3a_o}\right)$$

soit encore un débit molaire critique

$$\dot{n}_{crit} \sim \frac{4\hbar}{(m_3^* - m_3)\, V_{40}} \frac{\sigma}{d} L_n \left(\frac{d}{3a_o}\right) \sim 2{,}35 \times 10^{-5} \frac{\sigma}{d} L_n \left(\frac{d}{3a_o}\right)$$

La section de passage minimale dans l'échangeur est de l'ordre de

3×10^{-3} cm^2, la dimension d de 10^{-2} cm; le débit critique correspondant est de 75 µmole/sec. Ce débit est de l'ordre de grandeur de ceux mis en jeu dans le réfrigérateur et qui conduisent à des pertes en charges anormales.

Le débit molaire critique pour l'échangeur annulaire, de diamètre 0,8 x 1 mm, est de 83 µmole/sec.

L'existence d'une perte en charge osmotique anormale dans la colonne diluée a également été observée par T.O. Nünikosi (14). De la coïncidence des ordres de grandeur et de la manifestation de l'existence d'un seuil pour l'apparition de la perte en charge, je conclus qu'il est vraisemblable que la vitesse critique dans le superfluide est le facteur limitatif des performances de notre appareil.

3.4. COURBE DE PUISSANCE DU REFRIGERATEUR

Comme nous l'avons vu dans les chapitres précédents, la production du froid au sein de la chambre de mélange s'effectue par passage forcé de la phase concentrée à la phase diluée d'une quantité $\dot{n}_3$ d'hélium 3. La quantité de chaleur par seconde Q° que peut absorber le réfrigérateur est donc

$$Q^\circ = \dot{n}_3 L(T)$$

$\dot{n}_3$ étant le débit molaire d'hélium 3 passant de la phase concentrée à la phase diluée et L(T) la chaleur molaire de dissolution à la température considérée.

Des mesures de puissance ont été effectuées sur notre réfrigérateur Pour ce faire, nous avons mesuré :

- la température de T de la chambre de mélange
- la puissance P (en erg/sec) appliquée sur la chambre de mélange à l'aide d'une résistance
- le débit $\dot{n}$ en µmole/sec de circulation du mélange
- le débit $\dot{n}_3$ en µmole/sec déduit de $\dot{n}$ par l'application du taux x de concentration, celui-ci étant mesuré à l'aide d'un spectromètre de masse.
- la température T_{He3} d'entrée de l'hélium 3 concentré dans la chambre de mélange.

La quantité de chaleur amenée sur la chambre est : $P + \dot{n}_3 \Delta\mathcal{H}_c$

$\mathcal{H}_c$ étant la variation d'enthalpie du concentré entre sa température d'arrivée et la température du mélange (donc la quantité d'énergie nécessaire à son refroidissement). Nous avons donc $\dot{n}_3 L(T) = P + \dot{n}_3 \Delta\mathcal{H}_c$

soit $L(T) = \frac{P}{\dot{n}_3} + \Delta\mathcal{H}_c$. Dans la limite $T \longrightarrow 0$, nous aurons :

$L(T) = \mathcal{P}(T^2)$.

L'ensemble des résultats expérimentaux est exprimé sur le tableau suivant :

T m°K	P erg/s	$\dot{n}$ µmole/s	$\dot{n}_3$ µmole/s	T_{He3}	$\frac{P}{\dot{n}}$ J/mole	$\frac{P}{\dot{n}_3}$ J/mole	L J/mole	T^2 x 10^{-3}	B
31,5	0	31,5	29	86	0,066	0	0,066	0,99	66,7
35	5	32	29,5	90	0,071	0,017	0,088	1,225	71,8
37	8	32	29,5	92	0,073	0,027	0,100	1,37	73,4
42	24	37	34	97	0,076	0,070	0,146	1,76	83
51	50	39,5	36,3	102	0,081	0,138	0,219	2,60	84
61	86	45	41,5	104	0,069	0,206	0,275	3,72	74
83	170	42	38,5	112	0,056	0,442	0,498		
99	275	42	38,5	123	0,050	0,715	0,765		
114	352	39,5	36,3	133	0,040	0,970	1,010		
137	495	40,8	37,5	150	0,030	1,320	1,350		
180	877	45	41,4	183	0,005	2,120	2,125		
128	380	39,5	36,3	141	0,030	0,964	0,994		

La valeur moyenne de β en-dessous de 50 mK est donc 76 J/mole °K² d'où $L \simeq 76\ T^2$ J/mole . Sur la figure n° 30 est représentée la courbe $P/\rho_3 = f(T)$ théorique, calculée par E. Varoquaux (15) ainsi que les points expérimentaux obtenus avec notre appareil. L'accord est satisfaisant ce qui montre que le fonctionnement de l'appareil est en accord avec les prévisions théoriques.

3.5. ANALYSE DU FONCTIONNEMENT D'UN ECHANGEUR

Des mesures ont été effectuées sur un des échangeurs localisés, pour permettre l'analyse de son fonctionnement. Le rendement thermique d'un échangeur de chaleur à très basse température est limité par la résistance superficielle de Kapitza.

3.51. FONCTIONNEMENT THEORIQUE D'UN ECHANGEUR

a) Résistance de Kapitza

L'échange de chaleur Q° entre l'hélium liquide et un corps solide suit une loi de la forme : (16)

$$\frac{Q^\circ}{A} = \alpha\ (T_2^4 - T_1^4)$$

A étant l'aire de contact entre l'hélium et le solide, T_2 étant la température de l'hélium et T_1 la température du corps solide. Si la différence entre les températures T_1 et T_2 est faible, cette équation peut se mettre sous la forme :

$$\frac{Q^\circ}{A} = 4\alpha\ T^3\ \Delta T = \frac{\Delta T}{R_K}$$

avec

$$R_K = \frac{1}{4\alpha\ T^3}$$

Cette limitation R_K du transfert d'énergie thermique qui apparaît à la surface de contact entre l'hélium et un corps solide est la résistance de Kapitza.

b) Cas d'un échangeur

Dans un échangeur localisé, nous avons deux liquides circulant à contre courant, séparés par une paroi

- l'un concentré provient du pot à 1 K et se dirige vers la chambre de mélange.

- l'autre dilué remonte de la chambre de mélange vers le bouilleur. Le dilué est donc plus froid que le concentré; le but de l'échangeur est de refroidir le concentré avant son entrée dans la chambre de mélange.

Soient T_c la température du liquide concentré à la sortie de l'échangeur, T_d la température du liquide dilué à la sortie de l'échangeur, α_c et α_d les coefficients de Kapitza pour les interfaces concentré , paroi d'échange et dilué, paroi d'échange, A_c et A_D les surfaces de contact de la paroi avec le concentré et le dilué, T_b la température de la paroi. Du fait du principe de la conservation de l'énergie, nous avons :

$$Q^\circ = \alpha_c A_c (T_c^4 - T_b^4) = \alpha_d A_d (T_b^4 - T_c^4)$$

En éliminant la température de la paroi T_b il vient :

$$Q^\circ = \frac{\alpha_d \alpha_c A_d A_c}{\alpha_d A_d + \alpha_c A_c} (T_c^4 - T_d^4)$$

Mais la quantité de chaleur ainsi cédée par la phase diluée est :

$$Q^\circ = \mathring{n} \left[\mathcal{H}_d (T_d) - \mathcal{H}_d (T'_d) \right]$$

$\mathcal{H}_d(T)$ étant l'enthalpie du dilué à la température considérée T,
T'_d la température de la phase diluée à l'entrée de l'échangeur,
$\mathring{n}$ le débit molaire d'hélium 3 au travers de l'échangeur.

d'où
$$\frac{\alpha_d \alpha_c A_d A_c}{\alpha_d A_d + \alpha_c A_c} = \frac{\mathring{n} \left[\mathcal{H}_d(T_d) - \mathcal{H}_d(T'_d) \right]}{(T_c^4 - T_d^4)}$$

Un échangeur est donc caractérisé par le facteur

$$(\alpha A)_m = \frac{\alpha_d \alpha_c A_d A_c}{\alpha_d A_d + \alpha_c A_c}$$

3.52. FONCTIONNEMENT PRATIQUE D'UN ECHANGEUR

Les échangeurs que nous utilisons sont tels que $A_d = A_c = A$. L'échangeur est donc caractérisé par le facteur :

$$\alpha_m = \frac{\alpha_d \alpha_c}{\alpha_c + \alpha_d}$$

soit

$$\alpha_m = \frac{\mathring{n} \left[\mathcal{H}_d (T_d) - \mathcal{H}_d (T'_d) \right]}{A (T_c^4 - T_d^4)}$$

Pour un échangeur donné, dont la surface effective d'échange est 33,6 cm^2, nous avons relevé les paramètres suivants :

T température de la chambre de mélange

T'd température du dilué à l'entrée de l'échangeur

Td température du dilué à la sortie de l'échangeur

Tc température du concentré à la sortie de l'échangeur

$\dot{n}$ débit en hélium 3 de l'appareil.

Du fait de la conservation de l'énergie, nous avons :

$$\mathcal{H}\, d\,(Td) - \mathcal{H}\, d\,(T'd) = \mathcal{H}\, c\,(T'c) - \mathcal{H}\, c(Tc)$$

$\mathcal{H}\, c(T)$ étant l'enthalpie du concentré à la température, T, T'c la température du concentré à l'entrée de l'échangeur. $\mathcal{H}\, d(Td) - \mathcal{H} d(T'd)$ est déduit de la courbe représentée au schéma n° 31. Connaissant $\mathcal{H}\, d(Td) - \mathcal{H} d(T'd)$ et Tc nous déduisons T'c de la courbe représentée sur le schéma n° 32.

Nous avons admis que le profil thermique dans l'échangeur est grosso modo linéaire ce qui est vrai tant que les différences de température entrée-sortie ne sont pas trop grandes, et nous avons calculé l'échange thermique au milieu de l'échangeur.

L'échangeur est donc caractérisé par :

$$\alpha_m = \frac{\dot{n}\, \mathcal{H}\, d\,(Td) - \mathcal{H}\, d(T'd)}{A\,(Tc_m^4 - Td_m^4)}$$

avec $Tc_m = \dfrac{Tc + T'c}{2}$ et $Td_m = \dfrac{Td + T'd}{2}$

La température moyenne de l'échangeur est calculée par la formule (16)

$$T_m^4 = \frac{2\,(T'c^2\, Td^2 - T'd^2\, Tc^2)}{\mathrm{Ln}\ \dfrac{(T'c^2 - T'd^2)\,(Tc^2 + Td^2)}{(Td^2 - Tc^2)(T'c^2 + T'd^2)}}$$

Nous avons aussi exprimé

$$\frac{Q^\circ}{A} = \frac{\dot{n}\ \Delta\mathcal{H}\, d}{A}$$

L'ensemble des résultats est reporté sur le tableau suivant :

T chambre mK	T'd mK	Td mK	$\Delta^{\circ}H(d)$ erg x 10^7	Tc mK	T'c mK	$\mathring{n}$ µmole/.	Td_m mK	Tc_m mK	α_m erg s^{-1} cm^{-2} K^{-4}	Tm	$\mathring{n}\,\Delta^{\circ}H_f$ A	T_o mK
31,5	50	100	0,44	86	242	29	75	164	5 473	106	3,80	79
35	50	100	0,44	92	244	29,4	75	168	5 033	124	3,94	83
37	40	105	0,52	92	263	29,4	72,5	177,5	4 715	166	4,55	87
42	54	109	0,58	97	280	34	81,5	188,5	4 817	172	5,87	91
51	53,5	120	0,64	103	294	36,3	86,75	198,5	4 622	191	6,93	96
61	67,5	128	0,63	104	294	41,4	97,75	199	5 256	207	7,77	103
83	85	145	0,66	112	300	38,6	115	200	5 320	233	7,58	108
99	104	160	0,68	123	312	38,6	132	217,5	4 039	253	7,83	120
114	115	170	0,74	135	330	36,3	142,5	232,5	3 185	262	8	132
137	135	190	0,80	150	348	37,5	162,5	249	2 837	288	8,92	150
180	170	220	0,80	185	364	41,4	195	274,5	2 329	297	9,87	188

To est la température relevée sur le côté chaud du corps de l'échangeur.

Sur le schéma n° 33 est représenté $Q°/A = f(T)$ pour l'échangeur considéré ainsi que pour l'échangeur étudié par P. Roubeau, D. Lefur et E. Varoquaux[16]. Au vu de ces deux courbes, on s'aperçoit que la pente n'est pas la même. De plus la température de sortie du concentré varie peu comparativement à la température moyenne. La température de sortie du concentré est à peu de chose près la température du corps de l'échangeur mesurée. Le corps de l'échangeur en acier inoxydable shunte donc partiellement l'échangeur et diminue le rendement thermique. Ce défaut peut être pallié mais au prix d'une plus grande complexité de fabrication de l'échangeur.

3.6. VITESSE DE DESCENTE EN TEMPERATURE

Le présent paragraphe sera la conclusion de ce chapitre. En effet la vitesse de descente en température indique le bon fonctionnement et la facilité d'emploi du réfrigérateur. Lors d'une mise en route de l'appareil, ont été relevées, en fonction du temps, les températures du bouilleur et de la chambre de mélange.

L'instant 0 est celui où débute la circulation du mélange (mise en route de la pompe primaire 2008H). Cet instant marque la fin de la condensation. Les résultats sont regroupés sur le graphique représenté au schéma n° 34. Nous voyons que dès les premiers instants, la température de la chambre baisse brutalement de 550 m K à 410 m K puis la descente se stabilise aux alentours de 13 m K par minute.jusqu'à environ 150 m K. La température du bouilleur remonte par contre du fait de la diminution progressive de la concentration en hélium 3. Au bout de 30 minutes (temps nécessaire à l'amorçage de la pompe secondaire ODP 800) le pompage secondaire est mis en action. Le bouilleur atteint alors très rapidement sa température de fonctionnement (440 m K). La température dans la chambre de mélange baisse à nouveau rapidement (de nouveau 13 m K par minute). La température atteint 35 mK au bout d'une heure. Elle continue à baisser jusqu'aux environs de 30 mK, température limite de l'appareil dans sa configuration actuelle, au fur et à mesure que le vide d'isolement s'améliore. Ces courbes de descente en température (schéma n° 35) sont typiques du comportement du réfrigérateur et ont été vérifiées à plusieurs reprises.

L'appareil fonctionne sans défaillance depuis plus d'un an et demi.

Ainsi le but recherché, défini dans l'introduction d'un réfrigérateur à dissolution fiable, souple d'emploi, de mise en route rapide, a été atteint.

REFERENCES

(1) E. Varoquaux, rapport final de la convention DRME n° 68-34-750 15 juillet 1971.

(2) O. Avenel, P. Piéjus et E. Varoquaux, IEEE Transaction IM-19 408 1970.

(3) D.O. Edwards, R.E. Sarvinski, P. Seligman, J.T. Tough Preprint Ohio State University.

(4) M. Locatelli, D. Arnaud , J. Thomasson, Note SBT 248/71 du CENG (1971) .

(5) L.B. Loeb, S. Dushman, F.M. Devienne
Condensation et adsorption des molécules - Gauthier-Villars - Paris 1952.
Conduction thermique dans les gaz raréfiés, Gauthier-Villars Paris 1953.

(6) J.L. Lebowitz, H.L. Frisch, Phys. Rev. (1957) 107 , 917
Chih-Lan Su, D. Roger Willis, Phys. Fluids (1968) 11 , 2131
Chih-Lan Su, Phys. Fluids (1968) 11, 2144
M. Grmela, J. Kyncl, Can. J. Phys. (1969) 47 , 2815
M. Grmela, J. Votruba, Can. J. Phys. (1969) 47 , 2283

(7) C.F. Mate, S.P. Sawyer
Phys. Rev. Lett. (1968) 20 , 834

(8) Landau, Lifshitz, Statistical Physics
Pergamon Press Ltd, London Paris (1958)

(9) J. Wilks, The properties of liquid and solid helium
Clarendon Press, Oxford (1967)

(10) E. Varoquaux, rapport final, contrat DRME 65-34-082, Dec. 1967.

(11) E. Varoquaux, Thèse, Orsay (1971)

(12) Cette explication est suggérée par E. Varoquaux

(13) J. Wilks, Liquid and Solid Helium, Clarendon Oxford (1967) p.293.

(14) T.O. Niinikoski, Nuclear Inst. and Methods (1971) 97 , 95.

(15) E. Varoquaux, Compte rendu du Colloque Franco Soviétique de Bakouriani(Tbilissi 1969), volume 1.

(16) E. Varoquaux, Thèse Orsay (1971)
P. Roubeau, D. Lefur, E. Varoquaux
Proc. ICEC III - Berlin - 1970 - p.315.

CONCLUSION

Le principe des réfrigérateurs à dissolution a été proposé par H. London (1) en 1962 et mis en pratique pour la première fois en 1965. Ces appareils permettent d'atteindre et de maintenir des températures bien inférieures à 0,1 K pendant des temps très longs.

La première machine de ce type fabriquée à l'Institut d'Electronique Fondamentale a fonctionné en 1967. Elle a permis d'étudier le principe de la réfrigération par dissolution de l'hélium 3 dans l'hélium 4 et de mesurer les propriétés thermodynamiques des mélanges. (2).

Le présent travail décrit l'étude et la réalisation d'une seconde version de cet appareil. Mettant à profit l'expérience acquise, les objectifs fixés étaient les suivants :

- augmentation de la puissance et de la vitesse de refroidissement.
- accroissement de la fiabilité et de la sécurité de marche.
- simplicité et commodité d'emploi.

Mon travail s'est scindé en trois étapes correspondant aux trois chapitres de ce mémoire, dont je vais reprendre les conclusions.

1. Choix des matériaux

La bonne fiabilité de l'appareil est conditionnée par le choix des matériaux de construction. Ceux-ci doivent résister aux chocs thermiques répétés et à la corrosion atmosphérique.

Les essais ont porté sur les matériaux métalliques conventionnels et sur certaines matières plastiques offrant une bonne tenue à froid.

Les tests utilisés consistaient à vérifier l'étanchéité au vide de pièces témoins soumises à des cycles thermiques répétés. Ils ont conduit à sélectionner les matériaux suivants :

- acier inoxydable très bas carbone stabilisé au molybdène (Norme Afnor Z2CND 17-12) (Norme américaine 316 L)

Cet acier conserve d'excellentes caractéristiques mécaniques à très basses températures et possède la plus haute résistance à la corrosion par piqûres.

- cuivre électrolytique exempt d'oxydule (type OFHC, Norme Afnor Cu C/2).

Ce cuivre industriel est pur et homogène; il présente peu d'inclusions et de défauts et n'est pas sensible à la maladie de l'hydrogène.

- résine polymérisée epoxide constituée d'éther diglycidique de biphénol A polymérisé par un anhydride d'acide (Epibond 100 A).

Cette résine thermodurcissable peut être moulée, usinée, collée à elle même et enrober de petites pièces métalliques. Elle présente une résistance satisfaisante aux basses températures.

- polycarbonate pur ou chargé (Makrolon)

Cette matière plastique est facilement usinable et collable à elle-même. Sa tenue à froid est excellente.

Les méthodes d'assemblage utilisées ont été la soudure à l'arc, les brasures dures et tendres et les brides à joint d'indium. Les tests très sévères que j'ai effectués n'ont révélé aucune défaillance systématique. Un nettoyage approprié des assemblages réalisés par brasure, permettant d'éviter les phénomènes de corrosion galvanique, en a garanti la longévité.

Seuls les matériaux et les techniques d'assemblage que j'ai retenus à la suite de cette étude systématique, ont été utilisés pour le montage du réfrigérateur.

2. Le réfrigérateur

Le réfrigérateur comprend trois parties distinctes :

- les vases Dewar destinés à contenir l'azote et l'hélium liquides.
- les circuits auxiliaires de pompage et de manipulation des gaz.
- la partie froide qui constitue le coeur du réfrigérateur.

Ces trois parties ont été conçues de façon à faciliter la réalisation des expériences et à offrir une grande sureté de fonctionnement.

Les vases Dewar sont solidaires l'un de l'autre, ce qui réduit leur montage ou démontage à une opération. Grâce à l'utilisation de deux vides d'isolement séparés, le prérefroidissement s'effectue de lui-même en moins de 12 heures jusqu'à l'azote liquide; le siphonnage de l'hélium prend 1 heure la machine étant alors prête à démarrer. L'autonomie des dewar en azote et en hélium est de 24 heures.

L'étage auxiliaire de condensation de l'hélium 3 à 1 K est à fonctionnement continu. Sa puissance est élevée. Il ne réclame aucune surveillance. La circulation du mélange hélium-3 hélium-4 est assurée par

un groupe de pompage dont le débit maximal mesuré est de 192 µmoles/sec d'hélium. Ce groupe, fonctionnant en circuit scellé, est doté de sécurités à l'aspiration et au refoulement. Les pertes en charge de la ligne de pompage ont été déterminées de manière à assurer une température de fonctionnement du distillateur inférieure à 0,5 K.

Le rendement à la rectification du distillateur est amélioré par un orifice qui limite l'écoulement du film superfluide. Le taux de transfert estimé du film correspond au taux effectivement observé de 7,5 µmoles/sec par cm de périmètre.

La vitesse de refroidissement et la température atteinte dépendent de l'inertie thermique et de la surface des échangeurs. Trois échangeurs ont été montés, le premier constitué de deux tubes concentriques, les deux autres d'une feuille métallique pincée entre deux flasques. Ils offrent une surface d'échange suffisante pour un très faible volume mort et,en outre, leur fabrication est aisée.

Les anomalies de fonctionnement les plus fréquentes sont les fuites sur le vide d'isolement et les bouchages. Elles peuvent être éliminées en grande partie par l'observation de procédures de mise en route et d'arrêt que j'ai décrites en grand détail.

Ainsi, grâce aux choix des matériaux de construction, à la conception appropriée de l'appareil et l'adoption de procédures adéquates, le réfrigérateur à dissolution construit à l'Institut d'Electronique Fondamentale fonctionne sans anomalies ni défaillances depuis juillet 1971 avec des performances satisfaisantes.

3. Performances et résultats

Dans le but d'évaluer l'apport de chaleur parasite sur la chambre de mélange, j'ai mesuré la conductibilité thermique de l'acier inoxydable utilisé pour les supports.qui est de 7100 T erg/s.cm°K. Les pertes sont aussi influencées par la valeur de la pression résiduelle dans le vide d'isolement. La pression habituellement atteinte est inférieure à 10^{-9} Torr valeur maximale tolérable. Les premières mesures ont montré que les performances du réfrigérateur étaient très sensible à la perte en charge osmotique dans la colonne diluée. L'analyse des résultats conduit à des valeurs de pertes en charge inexplicables par la seule viscosité de l'hélium 3 en solution. Ce phénomène peut être expliqué par l'apparition de lignes de vortex lorsque la vitesse critique de super-

fluidité est dépassée. De ce fait le débit de circulation est limité à 50 µmoles/sec pour un bon fonctionnement de l'appareil.

La puissance de réfrigération disponible, mesurée pour un débit de l'ordre de 40 µmoles/sec d'hélium 3 est de 275 erg/s à 100 m K. La température atteinte en absence de charge est 31,5 m K. Les mesures de puissance conduisent à une chaleur latente de dissolution de la forme 76 T^2 J/mole à très basse température.

Le bilan enthalpique d'un échangeur à membrane se traduit par une valeur du coefficient moyen de Kapitza (3) de 5×10^3 erg/s $cm^2 °K^4$.

L'inertie thermique de l'appareil est faible. La vitesse de refroidissement est de 13 m K par minute. Une température inférieure à 35 m K est atteinte moins d'une heure après le démarrage du réfrigérateur soit moins d'une heure et demi après la fin du transfert d'hélium 4.

L'appareil que je viens de décrire, fiable, commode d'emploi, stable à toutes températures entre 1 K et 30 m K a déjà servi à de nombreuses manipulations :

- mesure de la pression osmotique saturante des solutions hélium 3 hélium 4.
- expériences de RMN dans les métaux.
- étude des échanges thermiques à très basses températures.

REFERENCES

(1) H. London, G.R. Clarke, E. Mendoza, Phys. Rev. 128, 1992 (1962).

(2) E. Varoquaux, Thèse, Orsay 1971.

(3) P. Roubeau, D. Lefur, E. Varoquaux Proc. ICEC III, Berlin (1970) p. 315.

TABLE des MATIERES

Introduction page 1

Chapitre 1
LES MATERIAUX 6

1.1. Les matériaux métalliques 6

1.11. Critères du choix 6
1.12. Aciers inoxydables 7
1.13. Le cuivre 10
1.14. Les laitons 12
1.15. Maillechort et cupro-nickels 12

1.2. Les brasures 13

1.21. Les différents types de brasures 14
1.22. Résistances chimiques des brasures 17
1.23. L'utilisation des flux et la corrosion 17

a) La corrosion
b) Action des flux
c) Utilisation des flux et nettoyage des pièces

1.3. Choix des matériaux métalliques : conclusions 20

1.4. Matériaux non métalliques 21

1.41. Collages 21

a) Les différents types d'adhésifs
b) Du remplacement des brasures par des adhésifs

1.42. Pièces moulées 23
1.43. Vernis 26
1.44. Matières plastiques à usiner 27

1.5. Choix des matériaux non métalliques : conclusions 28

Références Chapitre 1 30

Appendice : Dilatation thermique des solides à basse température 32

Chapitre 2
LE REFRIGERATEUR 38

2.1. Introduction : la production des basses températures 38
2.2. La partie extérieure 40

2.21. Enveloppe extérieure 40

a) Le vase dewar n° 1: vide d'isolement ambiante azote
b) L'enceinte n° 2 : Réservoir d'azote liquide
c) Le vase dewar n° 3 : vide d'isolement azote-hélium

d) L'enceinte n° 4 : réservoir d'hélium liquide
e) Assemblage des enceintes

2.22. Performances des dewars 42

a) Pertes du dewar à azote
b) Pertes du dewar à hélium

2.23. Les parties auxiliaires 44

a) Le bon vide
b) Le pompage du pot à 1 K
c) Le circuit du mélange
d) Les appareils de mesure

2.3. La partie froide 49

2.31. Le pot à 1 K 49

a) Description du pot
b) Alimentation du pot à 1 K
c) Fonctionnement du pot à 1 K
d) Performances du pot à 1 K

2.32. La partie mélange 51

a) Description succinte du fonctionnement
b) Echangeur de condensation
c) Les différents éléments de la partie mélange
d) Quantités d'hélium-3 d'hélium-4 nécessaires
e) Calcul des pertes en charge des différents circuits.

2.4. Le fonctionnement pratique du réfrigérateur 71

2.41. Procédures de démarrage et d'arrêt du réfrigérateur 71

a) Généralités
b) Procédure de démarrage du réfrigérateur
c) Procédure d'arrêt du réfrigérateur

2.42. Les anomalies de fonctionnement d'un réfrigérateur ayant déjà fonctionné normalement. 72

a) Anomalies de fonctionnement
b) Contrôles d'étanchéité : le test global à l'ambiante
c) Caractérisation des fuites
d) Contrôle d'étanchéité à la température de l'azote liquide
e) Absorbants - charbon actif
f) Fuites : autres aspects pratiques et conclusion
g) Bouchages

2.43. Instabilité de fonctionnement d'un réfrigérateur 91

Références Chapitre 2 93

Chapitre 3
PERFORMANCES ET RESULTATS

3.1. Introduction 96

3.2. Isolation thermique de la partie froide 97

3.21. Conduction par les supports 97

a) Mesure de conductibilité de l'acier inoxydable Z2 CND 17-12
b) Comparaison des conductibilités thermiques de l'acier, du graphite et de l'alumine
c) Pertes thermiques dues aux supports

3.22. Pression résiduelle tolérable dans le vide d'isolement 101

a) Conduction gazeuse
b) Chaleur amenée par adsorption

3.3. Influence de la perte en charge du côté dilué 105

3.31. Analyse expérimentale de la perte en charge 105

3.32. Vitesse d'écoulement et vitesse critique du superfluide 107

3.4. Courbe de puissance du réfrigérateur 110

3.5. Analyse du fonctionnement d'un échangeur 112

3.51. Fonctionnement théorique d'un échangeur 112

a) Résistance de Kapitza
b) Cas d'un échangeur

3.52. Fonctionnement pratique d'un échangeur 113

3.6. Vitesse de descente en température 116

Références Chapitre 3 117

Conclusion 118

Index

Acier inoxydable p.7, 8, 9
Action des flux p. 18
Adsorbant p. 87
Adsorption p. 83, 102, 103
Alimentation du pot à 1 K p. 49
Araldite B p. 25
Banlon p. 27
Bon vide p. 44
Bouchages p. 71, 90
Bouilleur voir distillateur
Castolin 18, 1802, 1020 p. 14
Chaleur latente de condensation He_3 p. 52
Chaleur latente de condensation He_4 p. 52
Chaleur latente de vaporisation de l'azote p. 43
Chaleur latente de vaporisation de l'hélium p. 44, 51
Chaleur molaire de dissolution p. 110
Colmatage des fuites p. 81
Concentration du mélange p. 48
Condensation : échangeur p. 52
Conductibilité thermique - acier inoxydable, graphite, alumine p. 100
Conduction gazeuse p. 101
Corrosion galvanique p. 17
Corrosion intergranulaire des aciers inoxydable p. 7
Cryopompage p. 75
Cuivre p. 10, 11
Cupro-nickels p. 12, 13
Détection de fuites p.78, 84, 85, 86
Dilatation thermique linéaire des solides p. 32, 36
Distillateur p. 38, 53
Doduco CN411, CN402, CN157, p. 15
Echangeurs p. 57, 113
Ecoulements laminaire, moléculaire p. 62
Epibond 100A p. 22, 24
Epikote 828 p. 26
Epoxylite 88-39, 801 p.22, 26
Film superfluide p. 54, 55, 56, 57

Flux p. 18
Fuites p. 71, 77, 78, 79, 88, 89, 90
Hypertrempe des aciers inoxydables p. 7
Indalley n° 5, n° 2 p. 15
Indium joints p. 44
Laitons p. 12
Libre parcours moyen p. 62
Lucaflex p. 27
Maillechort p. 12
Makrolon p. 28
Maladie de l'hydrogène du cuivre p. 11
Métal de Wood p. 16
Mesure du niveau de He_4 liquide p. 47
Nettoyage des pièces p. 19
Nylon p. 27
Oxydule p. 10
Pertes en charge p. 62, 64, 67
Pertes par conduction p. 42, 43
Pertes par rayonnement p. 42, 44
Piège à azote p. 47
Pierlon BCGO p. 21
Piqûres p. 19
Plexyglass p. 27
Polycarbonate p. 28
Polysulfane p. 28
Pompes p. 46
Pot à 1 K p. 49, 96
Pression osmotique p. 66
Rapport volume du gaz/volume du liquide bouillant p. 59
Renifleur p. 84, 85, 86
Résine CdF Chimie p. 23
Résistance de Kapitza p. 112
Sécurités des pompes p. 46
Séparation de phases p. 38
Soudure à l'arc p. 13
Stycast 2850 6T p. 22, 24
Superfluidité p. 38, vitesse critique p. 107, 109

Supraconductivité : températures p. 16
Taux de transfert du film superfluide p. 57
Téflon p. 27
Températures : mesures p. 48
Tinéa 63 p. 15
Vernis p. 26
Viscosités p. 62, 63, 64, 66